



SKRIPSI

SINTESIS ZEOLIT NaP DARI KAOLIN: PENGARUH WAKTU *LEACHING* KAOLIN

SITI AMINAH
NRP. 1413 100 103

Dosen Pembimbing
Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M. Sc.

**DEPARTEMEN KIMIA
FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER
SURABAYA
2017**



SCRIPT

SYNTHESIS OF ZEOLITE NaP FROM KAOLIN: THE EFFECT OF KAOLIN LEACHING TIME

SITI AMINAH
NRP. 1413 100 103

Supervisor
Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M. Sc.

DEPARTEMENT OF CHEMISTRY
FACULTY OF MATHEMATICS AND SCIENCES SEPULUH
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER
SURABAYA
2017

**SINTESIS ZEOLIT NaP DARI KAOLIN: PENGARUH
WAKTU *LEACHING* KAOLIN**

SKRIPSI

Diajukan untuk Memenuhi Salah Satu Syarat
Memperoleh Gelar Sarjana Sains
pada
Program Studi S-1 Departemen Kimia
Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam
Institut Teknologi Sepuluh Nopember

Oleh:
SITI AMINAH
NRP. 1413 100 103

**DEPARTEMEN KIMIA
FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER
SURABAYA
2017**

LEMBAR PENGESAHAN

SINTESIS ZEOLIT NaP DARI KAOLIN: PENGARUH WAKTU *LEACHING* KAOLIN

SKRIPSI

Disusun Oleh :

SITI AMINAH
NRP. 1413 100 103

Surabaya, 12 Mei 2017

Menyetujui,
Dosen Pembimbing

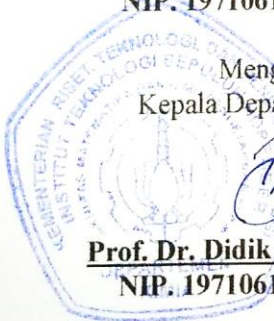


Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M.Sc
NIP. 19710616 199703 1 002

Mengetahui,
Kepala Departemen Kimia



Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M.Sc
NIP. 19710616 199703 1 002



SINTESIS ZEOLIT NaP DARI KAOLIN: PENGARUH WAKTU *LEACHING* KAOLIN

Nama : Siti Aminah
NRP : 1413100103
Departemen : Kimia FMIPA-ITS
Dosen Pembimbing : Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M.Sc.

Abstrak

Penelitian ini bertujuan untuk mengetahui pengaruh waktu *leaching* kaolin terhadap sintesis zeolit NaP. Padatan hasil *leaching* kaolin dikarakterisasi dengan XRF (*X-ray Fluorescence*) dan padatan hasil sintesis dikarakterisasi dengan spektroskopi inframerah (FTIR), difraksi sinar-X (XRD), dan *Scanning Electron Microscopy–Energy Dispersive X-ray* (SEM-EDX). Hasil karakterisasi XRF menunjukkan bahwa rasio Si/Al pada waktu *leaching* 4, 8, dan 12 jam mengalami peningkatan dari 1,53 menjadi 2,82; 3,18; dan 3,68. Hasil karakterisasi XRD dan FTIR menunjukkan bahwa zeolit NaP terbentuk pada waktu *leaching* dan hidrotermal masing-masing 4 dan 72 jam. Fase sodalit terbentuk pada waktu *leaching* dan hidrotermal masing-masing 4 dan 12-48 jam. Sedangkan pada sintesis zeolit NaP dengan variasi *leaching* 8 dan 12 jam masih terdapat fase lain yaitu zeolit NaY.

Kata kunci: Zeolit NaP, zeolit NaY, sodalit, kaolin, *leaching*, waktu hidrotermal.

SYNTHESIS OF ZEOLITE NaP FROM KAOLIN: THE EFFECT OF KAOLIN LEACHING TIME

Name : Siti Aminah
NRP : 1413100103
Department : Chemistry -ITS
Supervisor : Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M.Sc.

Abstract

The purpose of this research is to study the effect of kaolin leaching time on the synthesis of zeolite NaP. Solid products of leached kaolin were characterized with XRF (X-ray Fluorescence) and solid products of synthesized were characterized with infrared spectroscopy (FTIR), X-ray diffraction (XRD) and Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersive X-ray (SEM-EDX). The result of XRF characterization indicate that ratio of Si/Al for kaolin leached time 4, 8, and 12 hours increased from 1,53 to 2,82; 3,18; dan 3,68. The result of XRD and FTIR characterization show that the zeolite NaP formed with 4 hours kaolin leached and hydrothermal time of 72 hours. Phase impurities sodalite formed in 12-48 hours. There was some impurity on the synthesized for 8 and 12 hours kaolin leached like zeolite NaY.

Key word: Zeolite NaP, zeolite NaY, sodalite, kaolin, leaching, hydrothermal time.

KATA PENGANTAR

Puji syukur kehadiran Tuhan Yang Maha Esa yang selalu melimpahkan Rahmat dan Karunia-Nya, sehingga penulis dapat menyelesaikan dengan baik naskah tugas akhir yang berjudul “Sintesis Zeolit NaP dari Kaolin: Pengaruh Waktu *Leaching* Kaolin”.

Tulisan ini tidak akan terwujud tanpa bantuan, dukungan, doa, serta dorongan semangat dari semua pihak. Penulis sangat berterima kasih kepada:

1. Bapak Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M.Sc. selaku dosen pembimbing sekaligus Kepala Departemen Kimia yang telah memberikan pengarahan dan bimbingan selama proses penyusunan naskah tugas akhir ini.
2. Bapak Hamzah Fansuri, S.Si., M.Si., Ph.D. selaku dosen wali yang telah membantu dan membimbing saya dalam hal akademik selama kuliah di Departemen Kimia ITS.
3. Bapak Dr. Djoko Hartanto, M.Si. selaku Kepala Laboratorium Kimia Material dan Energi yang telah memberikan fasilitas selama pengerjaan tugas akhir ini.
4. Kedua orang tua, keluarga besar dan orang-orang yang berjasa dalam hidup saya yang selalu memberikan dukungan, semangat, serta doa yang tiada henti.
5. Teman-teman Kimia angkatan 2013, DPRG, Kemendagri BEM ITS, LPM 1.0, Bidadari Surga, Teman Kostan Blok W20 dan J35 yang telah membantu menyelesaikan naskah ini.

Penulis menyadari bahwa penulisan naskah tugas akhir ini tidak lepas dari kekurangan, oleh karena itu penulis mengharapkan kritik dan saran yang membangun untuk dapat meningkatkan kualitas dan perbaikan. Semoga naskah tugas akhir ini dapat membantu penulis dan pembaca.

Surabaya, 12 Mei 2017
Penulis

DAFTAR ISI

LEMBAR PENGESAHAN.....	iv
Abstrak	v
Abstract	vi
KATA PENGANTAR.....	vii
DAFTAR ISI.....	viii
DAFTAR GAMBAR.....	x
DAFTAR TABEL	xii
DAFTAR LAMPIRAN	xiii
BAB I PENDAHULUAN.....	1
1.1 Latar Belakang.....	1
1.2 Permasalahan	4
1.3 Batasan Penelitian.....	4
1.4 Tujuan Penelitian	4
1.5 Manfaat	5
BAB II TINJAUAN PUSTAKA	6
2.1 Kaolin	6
2.2 Zeolit.....	9
2.3 Zeolit NaP.....	11
2.3.1 Sintesis Zeolit NaP	11
2.3.2 Pengaruh Waktu Hidrotermal	12
2.4 Leaching	14
2.5 Karakterisasi Padatan.....	16
2.5.1 X-Ray Flourensence (XRF).....	16
2.5.2 Difraksi sinar-X (X-Ray Diffraction / XRD)	17
2.5.3 Spektrokopi Fourier Transform Infrared (FTIR)	19
2.5.4 Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersive X-ray (SEM-EDX).....	21
BAB III METODOLOGI PENELITIAN.....	24
3.1 Alat dan Bahan	24
3.1.1 Alat	24
3.1.2 Bahan.....	24
3.2 Prosedur Penelitian	24

3.2.1 Leaching	24
3.2.2 Sintesis Zeolit NaP	25
3.3 Karakterisasi Hasil Sintesis	25
3.3.1 X-ray Fluorescence (XRF).....	25
3.3.2 Difraksi Sinar-X (XRD)	25
3.3.3 Spektroskopi Fourier Transform Infrared (FTIR)	26
3.3.4 Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersive X-ray (SEM-EDX)	26
BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN	28
4.1 Leaching	28
4.2 Sintesis Zeolit NaP	30
4.3 Hasil Karakterisasi Padatan	32
4.3.1 Difraksi Sinar-X (XRD)	32
4.3.2 Spektroskopi Fourier Transform Infrared (FTIR)	43
4.3.3 Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersive X-ray (SEM-EDX)	49
BAB V KESIMPULAN.....	52
5.1 Kesimpulan.....	52
5.2 Saran	52
DAFTAR PUSTAKA	54
LAMPIRAN	64
BIODATA PENULIS.....	72

DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1 Serbuk kaolin	7
Gambar 2.2 Struktur kaolin (Cheng dkk., 2012)	8
Gambar 2.3 Kerangka zeolit (Smart dan Moore, 1993)	10
Gambar 2.4 Kerangka tipe gismondine (Win, 2004).....	12
Gambar 2.5 Pengaruh waktu hidrotermal terhadap kristalinitas zeolit NaP (Wang dkk., 2007).....	13
Gambar 2.6 Pola difraktogram XRD zeolite NaP (Hansen dkk., 1993)	19
Gambar 2.7 Spektra inframerah zeolit NaP (Bohra dkk., 2013)	21
Gambar 2.8 Mikrograf SEM zeolit NaP (Behin dkk., 2015).....	23
Gambar 4.1 Aluran hubungan waktu leaching kaolin terhadap rasio Si/Al	30
Gambar 4.2 Aluran hubungan persentase rasio berat pada variasi waktu leaching kaolin 4, 8, dan 12 jam terhadap waktu hidrotermal.....	32
Gambar 4.3 Pola difraktogram XRD sintesis NaP dengan variasi waktu hidotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam dan waktu leaching 4 jam.....	33
Gambar 4.4 Aluran waktu hidrotermal terhadap intensitas fase pada variasi leaching 4 jam	35
Gambar 4.5 Pola difraktogram XRD sintesis NaP dengan variasi waktu hidotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam dan waktu leaching 8 jam.....	37
Gambar 4.6 Aluran waktu hidrotermal terhadap intensitas fase pada variasi leaching 8 jam	39
Gambar 4.7 Pola difraktogram XRD sintesis NaP dengan variasi waktu hidotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam dan waktu leaching 12 jam.....	41

Gambar 4.8 Aluran waktu hidrotermal terhadap intensitas fase pada variasi leaching 12 jam.....	42
Gambar 4.9 Aluran waktu hidrotermal terhadap intensitas fase pada setiap variasi waktu leaching.....	42
Gambar 4.10 Spektra inframerah kaolin dan hasil sintesis dengan variasi hidrotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam dengan waktu leaching 4 jam.....	44
Gambar 4.11 Spektra inframerah kaolin dan hasil sintesis dengan variasi hidrotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam dengan waktu leaching 8 jam.....	45
Gambar 4.12 Spektra inframerah kaolin dan hasil sintesis dengan variasi hidrotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam dengan waktu leaching 12 jam.....	46
Gambar 4.13 Mikrograf SEM zeolit NaP dengan (a) perbesaran 10.000, dan (b) perbesaran 20.000.....	50

DAFTAR TABEL

Tabel 2.1 Hasil leaching dari kaolin untuk menghilangkan Fe ..	15
Tabel 4.1 Komposisi dan rasio Si/Al pada kaolin awal dan leaching kaolin	29
Tabel 4.2 Puncak dengan sudut 2 θ hasil sintesis dengan variasi waktu hidrotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam dan waktu leaching 4 jam	34
Tabel 4.3 Puncak dengan sudut 2 θ hasil sintesis dengan variasi waktu hidrotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam dan waktu leaching 8 jam	38
Tabel 4.4 Puncak dengan sudut 2 θ hasil sintesis dengan variasi waktu hidrotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam dan waktu leaching 12 jam	40
Tabel 4.5 Bilangan gelombang puncak serapan spektra inframerah dengan variasi waktu hidrotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam dan waktu leaching 4 jam	47
Tabel 4.6 Bilangan gelombang puncak serapan spektra inframerah dengan variasi waktu hidrotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam dan waktu leaching 8 jam	48
Tabel 4.7 Bilangan gelombang puncak serapan spektra inframerah dengan variasi waktu hidrotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam dan waktu leaching 12 jam	49
Tabel 4.8 Hasil analisis EDX sampel zeolit NaP	51

DAFTAR LAMPIRAN

A. Prosedur Sintesis Zeolit NaP	63
B. Perhitungan Sintesis Zeolit NaP	65
C. Data Karakterisasi	68

BAB I

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Zeolit merupakan material kristal aluminosilikat hidrat dari logam alkali atau alkali tanah yang saling terhubung dengan adanya atom-atom oksigen, sehingga membentuk kerangka tiga dimensi yang dibentuk oleh tetrahedral $[\text{SiO}_4]^{4-}$ dan $[\text{AlO}_4]^{5-}$ serta mengandung rongga-rongga berisi ion logam (Gougazeh dan Buhl, 2013). Rongga tersebut biasanya diisi oleh ion logam alkali atau alkali tanah dan molekul air yang dapat bergerak bebas (Chetam, 1992). Ion logam tersebut menyeimbangkan muatan negatif yang dimiliki oleh $[\text{AlO}_4]^{5-}$ dan dapat berpindah posisi melalui pertukaran kation (Flanigen dkk., 2010). Zeolit banyak digunakan dalam bidang katalisis heterogen, pemisahan dan pertukaran ion, adsorpsi, dan membran (Huang dkk., 2010).

Zeolit secara alamiah dapat terbentuk di alam yang disebut zeolit alam. Selain zeolit alam, zeolit juga bisa disintesis dari berbagai bahan yang mengandung alumina dan silika. Saat ini, zeolit sintetis lebih banyak digunakan secara komersial daripada zeolit alam karena zeolit sintetis memiliki tingkat kemurnian kristal yang tinggi dan keseragaman ukuran partikel (Breck, 1974; Szoztak, 1998). Sintetis zeolit pertama kali dilakukan oleh peneliti St. Claire-Deville pada tahun 1862, yang diikuti oleh beberapa peneliti lainnya seperti Bassaldella (1990) dan Musyoka (2009). Penelitian sebelumnya telah berhasil mensintesis zeolit, salah satu jenisnya adalah zeolit NaP.

Zeolit NaP merupakan salah satu jenis zeolit yang tersusun dari kerangka (*framework*) tipe gismondine (GIS) dengan memotong saluran 0.31 nm x 0.44 nm dalam $[100]$ dan 0.26 nm x

0.49 nm dalam [010] (Albert, 1998). Umumnya, Zeolit NaP disintesis pada suhu antara 70 dan 250°C dengan waktu 96 jam (Zobuwa dkk., 2008). Berdasarkan prosedur penelitian Hildrebarando dkk. (2013), sintesis dilakukan pada suhu 100°C selama 60 jam dengan kaolin yang berasal dari Region Amazon sebagai bahan dasar penghasil silika dan alumina. Zeolit NaP memiliki ukuran pori yang lebih kecil daripada zeolit tipe FAU, LTA, dan MF1. Oleh karena itu, zeolite NaP banyak digunakan untuk pemisahan gas molekul kecil (Kakansson, 1990), dapat juga digunakan untuk penghilangan racun dan limbah radioaktif seperti Cs, Sr, Ba, Pb, U, logam berat, ammonium dari air limbah, ekstraksi natrium air laut, dan deterjen ramah lingkungan (Atkins, 1995; Nerry, 2003).

Pada umumnya, sintesis zeolit NaP dilakukan dengan metode kristalisasi secara hidrotermal, yaitu teknik kristalisasi partikel prekursor pada temperatur dan tekanan uap yang tinggi dengan media pelarut air (Lobachev, 1973). Waktu hidrotermal merupakan salah satu faktor penting yang mempengaruhi sintesis zeolit. Semakin lama waktu hidrotermal, kristalinitas produk yang dihasilkan semakin meningkat. Hal ini juga berlaku dalam sintesis zeolit NaP, peningkatan waktu hidrotermal dapat meningkatkan pembentukan fasa zeolit NaP. Hal tersebut sesuai dengan penelitian yang dilakukan oleh Bohra dkk. (2013) dimana zeolit NaP disintesis dari abu sekam padi dengan rasio molar 2,1 Na₂O: Al₂O₃: 3,8 SiO₂: 50 H₂O melalui proses hidrotermal pada suhu 100°C selama 48-96 jam.

Sintesis zeolit NaP dapat dilakukan dalam medium alkali dengan sumber silika dan alumina yang berbeda, misalnya aluminium hidroksida dan natrium aluminosilikat. Akan tetapi, penggunaan bahan kimia murni sebagai sumber alumina dan silika relatif mahal dan ketersediaannya yang terbatas, sehingga

menyebabkan biaya produksi yang tinggi. Terdapat alternatif bahan (*raw material*) lain yang murah dan tersedia melimpah di alam, khususnya di Indonesia. Penelitian tentang sintesis zeolit dari bahan alam sudah banyak dilakukan sebelumnya, misalnya penggunaan abu layang (Molina dan Poole, 2004; Tanaka dkk., 2008; Musyoka dkk., 2013; Belviso dkk., 2014; Jha dan Singh, 2014), kaolin (Mackinnon dkk., 2010; Belviso dkk., 2013), mineral-mineral tanah liat, dan sekam padi. Beberapa bahan alam tersebut merupakan limbah yang banyak mengandung silika dan alumina sehingga dapat dijadikan sebagai bahan baku sintesis zeolit. (Saija dkk., 1983; Querol dkk., 1997; Tanaka dkk., 2004; Adamczyk dan Bialecka, 2005; Walek dkk., 2008; Wang dkk., 2008).

Salah satu sumber daya alam Indonesia yang melimpah yaitu kaolin. Kaolin adalah jenis mineral tanah liat berwarna putih yang mengandung 10-95% mineral dan sebagian besar terdiri dari kaolinit (85-95%), aluminosilikat hidrat dengan komposisi $2\text{H}_2\text{O}:\text{Al}_2\text{O}_3:2\text{SiO}_2$ (Grim, 1968). Kaolin banyak digunakan untuk aplikasi industri, seperti produksi semen, keramik, porselen, bahan kimia, kosmetik, obat-obatan, tekstil, dan yang terbesar adalah untuk industri kertas (Rashad, 2013). Selain itu, kandungan SiO_2 dan Al_2O_3 dalam kaolin juga dapat digunakan sebagai bahan sintesis zeolit (Barrer, 1982).

Penggunaan kaolin sebagai bahan baku (*raw material*) alternatif untuk sintesis zeolit NaP sangat berhubungan dengan kandungan silika dan alumina. Terdapat beberapa metode untuk memodifikasi Si dan Al, salah satunya yaitu *leaching* dengan aktivasi asam (Thoriils dkk., 1950; Rhodes dkk., 1991; Rodrigues, 2003). Metode ini juga dapat menghindari terjadinya agregat partikel pada kaolin, penghilangan pengotor, sehingga berubah komposisi kimia dan struktur kaolinnya (Belver dkk., 2002). Hal

tersebut diperkuat dengan penelitian yang dilakukan oleh Panda dkk. (2010) dimana kaolin *dileaching* dengan asam sulfat dengan variasi konsentrasi dan waktu yang berbeda menghasilkan rasio kandungan Si/Al meningkat dari 0,65 menjadi 8,09.

1.2 Permasalahan

Sintesis zeolit NaP menggunakan kaolin sebagai bahan alam yang dimodifikasi agar memenuhi syarat sebagai bahan baku untuk sintesis zeolit NaP. Metode *leaching* digunakan untuk meningkatkan kandungan Si/Al dari kaolin. Oleh Karena itu, perlu adanya penelitian tentang pengaruh waktu *leaching* kaolin terhadap rasio Si/Al dari kaolin dan waktu hidrotermal terhadap sintesis zeolit NaP menggunakan kaolin yang telah *dileaching*.

1.3 Batasan Penelitian

Batasan masalah dalam penelitian ini adalah:

1. Sintesis zeolit NaP menggunakan bahan baku kaolin yang telah *dileaching* asam sulfat 4 M dengan variasi waktu 4, 8, dan 12 jam.
2. Proses hidrotermal (kristalisasi) dalam sintesis zeolit NaP dilakukan dengan variasi waktu 3, 6, 12, 24, 48, dan 72 jam.

1.4 Tujuan Penelitian

Penelitian ini bertujuan untuk mempelajari pengaruh waktu *leaching* kaolin terhadap sintesis zeolit NaP dari kaolin yang telah *dileaching*.

1.5 Manfaat

Manfaat penelitian ini yaitu memberikan rujukan mengenai pengaruh waktu *leaching* kaolin terhadap sintesis zeolit NaP dari kaolin yang telah *dileaching*.

BAB II

TINJAUAN PUSTAKA

2.1 Kaolin

Kaolin merupakan nama yang diberikan untuk sebuah bukit dekat Jau-chau Fu, China, dimana kaolin pertama kali ditambang. Nama “kaolin” sendiri berasal dari kata Kau-Ling atau pegunungan tinggi (Sepulveda dkk., 1983). Kaolin, yang biasa disebut tanah liat cina, sebagian besar mengandung kaolinit (10-95%). Selain kaolinit, kaolin biasanya berisi kuarsa dan mika, lebih jarang feldspar, illite, montmorillonite, ilmenit, anastase, hematit, bauksit, zirkon, rutil, kyanit, sillimanite, grafit, atapulgit, dan haloisit (Rees dkk., 1992).

Kaolin merupakan bahan tambang berwujud serbuk berwarna putih. Material ini digunakan sebagai keramik selama berabad-abad yang lalu. Unsur utama pada kaolin adalah air, aluminium, dan silikat dengan komposisi $2\text{H}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$. Secara struktur, kaolin mengandung oktahedral alumina, tetrahedral silika, dan mempunyai rumus secara teori $(\text{OH})_8\text{Si}_4\text{Al}_4\text{O}_{10}$ dengan komposisi secara teori mengandung 46,54% SiO_2 , 39,5% Al_2O_3 , dan 13,96% H_2O (Prasad dkk, 1991).

Proses pembentukan kaolin disebut *kaolinization* (Grim, 1968). Pembentukan Kaolinit terjadi dalam tiga cara yaitu remukan atau reruntuhan dan transformasi batu karena efek dari faktor iklim (tipe Zettlitz), transformasi batu karena efek hidrotermal (tipe Cornwall), pembentukan oleh efek iklim dan hidrotermal (tipe campuran). Jenis mineral lempung yang terbentuk selama peluruhan batuan yang mengandung silikat aluminium dipengaruhi oleh iklim, rasio Si/Al, dan pH (Parker, 1988).

Sifat fisik dan kimia dari kaolin tersebut menentukan penggunaannya sebagai mineral industri yang dipengaruhi oleh

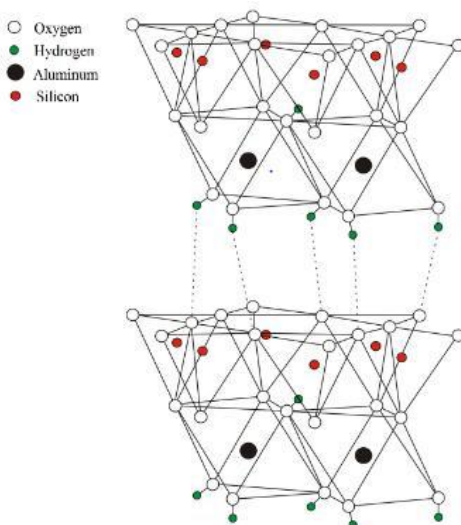
beberapa faktor, seperti kondisi geologi dimana kaolin yang terbentuk dan total komposisi mineralogi deposit kaolin. Kaolin memiliki ukuran sekitar 0,2 sampai 15 μm dengan area spesifik 10.000-29.000 m^2/kg . Kaolin kasar biasanya digunakan sebagai bahan pengisi (*filler*) sedangkan kaolin halus sebagai pelapis (*coater*), barang-barang tahan api dan isolator. Kegunaan kaolin sangat tergantung pada karakteristiknya karena akan berpengaruh terhadap kualitasnya (Rashad, 2013).



Gambar 2.1 Serbuk kaolin

Sifat fisik dan kimia kaolin dapat diubah dengan perlakuan termal dan kimiawi. Pada proses kalsinasi kaolin dengan suhu diatas 500°C terjadi penataan ulang ikatan ion Si dan Al serta pembentukan ion Al berkoordinasi 4 dan 5 dengan mengubah Al koordinasi 6. Reaktivitas kaolin meningkat seiring dengan penurunan jumlah Al koordinasi 6. Menurut Prasad dkk. (1991), proses kalsinasi kaolin pada suhu $650\text{-}700^{\circ}\text{C}$ akan memutus ikatan gugus hidroksi dalam struktur kaolin dan melepaskan sejumlah molekul air membentuk fasa amorf yang disebut metakaolin. Sementara itu, kalsinasi kaolin diatas suhu 900°C akan mengubah

metakaolin menjadi $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$. Metakaolin banyak digunakan sebagai bahan dasar sintesis zeolit karena bersifat semikristalin dan lebih reaktif dibandingkan kaolin. Konversi metakaolin menjadi zeolit melibatkan dua langkah yaitu pembentukan gel aluminosilikat dan nukleasi kristal dan pertumbuhan (Akolekar dkk., 1997). 1x



Gambar 2.2 Struktur kaolin (Cheng dkk., 2012)

Struktur kaolinit adalah lembaran tetrahedral silika dengan lembar alumina oktahedral. Lembaran-lembaran ini diatur sedemikian rupa sehingga ujung-ujung tetrahedron silika dan lapisan yang berdekatan dengan lembar oktahedral membentuk lapisan umum (Grim, 1968). Pada Gambar 2.2, struktur kaolin dibentuk oleh struktur tetrahedral SiO_4 , $\text{Al}(\text{OH})_6$ [Si_2O_5] $^{2-}$, dan $[\text{Al}(\text{OH})_4]^{2+}$ komposisi oktahedral dengan pseudo heksagonal simetri $[\text{O}_6\text{Si}_4\text{O}_4(\text{OH})_2\text{Al}_4(\text{OH})_6]$ (Cheng dkk., 2012). Unit dasar lapisan tetrahedral adalah silika tetrahedral (SiO_4) dimana satu

silikon mengikat empat atom oksigen. Sementara itu, lapisan oktahedral tersusun atas unit dasar aluminium oktahedral dan ion hidroksida dimana satu aluminium mengikat enam atom oksigen. Lapisan tetrahedral dan oktahedral ini tersusun 1:1 dengan ketebalan unit sebesar 7,13 Å (Murray, 2000).

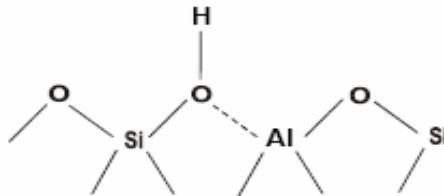
2.2 Zeolit

Nama zeolit berasal dari bahasa Yunani yang mempunyai arti "batu mendidih" dengan kemampuan bahan tersebut untuk menyerap air dan melepaskannya saat pemanasan. Zeolit merupakan material kristal berpori yang mengandung pori-pori molekul dengan ukuran 5-12 Å atau 0,5-1,2 nm. Zeolit konvensional didasarkan pada kerangka silikat dimana substitusi dari beberapa Si dengan Al (atau logam lainnya) mengarah ke muatan negatif pada kerangka, dengan kation (biasanya Na, alkali, atau alkali tanah logam lainnya) dalam struktur pori. Hal ini menyebabkan sifat penting lainnya antara lain pertukaran ion, dimana ion logam dalam struktur pori dapat digantikan oleh kation lain (misalnya logam, amonium, amonium kuaterner) (Hay, 1966).

Zeolit terjadi secara alami dan umumnya dibentuk dalam lingkungan alkali dari sedimen vulkanik dan material. Zeolit pertama kali ditemukan dan diidentifikasi seperti stilbite. Zeolit yang kelimpahannya umum antara lain analcime, klinoptilolit, erionit, heulandite, laumontite, dan mordenit. Banyak bahan-bahan tersebut memiliki sifat penting sebagai adsorben dan katalis, tetapi bentuk alam sering memiliki kesalahan dan penyimpangan dalam struktur yang dapat membatasi aplikasi. Ini adalah pengembangan metode laboratorium sintesis zeolit yang menyebabkan banyak aplikasi zeolit komersial. Zeolit sintetis pertama dibuat dari Na, Si, dan Al di laboratorium Linde di Buffalo, New York. Zeolit sintesis tersebut disebut zeolit A, menjadi yang pertama, dan ditemukan

terdiri dari fase sodalite. Aplikasi komersial pertama adalah sebagai agen pengeringan dan masih umum digunakan (Puppe, 1999).

Zeolit mempunyai kerangka yang tersusun dari satuan-satuan tetrahedral $[\text{SiO}_4]^{4-}$ dan $[\text{AlO}_4]^{5-}$ dengan atom oksigen sebagai penghubung antara atom silikon dan aluminium yang digabungkan secara tiga dimensi, ditunjukkan sebagai TO_4 , T = Si atau Al. Penggabungan satuan tetrahedron satu dengan lainnya terjadi adanya pemakaian bersama satu atom oksigen oleh dua tetrahedral, seperti yang ditunjukkan dalam Gambar 2.3 Tetrahedral $[\text{AlO}_4]^{5-}$ bermuatan negatif, sehingga zeolit alam dan zeolit sintesis memerlukan kation logam alkali (Na^+ , K^+) dan atau alkali tanah (Ca^{2+} , Ba^{2+}) sebagai pusat penyeimbang muatan untuk menjaga kenetralan muatan zeolit (Smart dan Moore, 1993).



Gambar 2.3 Kerangka zeolit (Smart dan Moore, 1993)

Tetrahedron TO_4 (T = Si atau Al) merupakan unit pembangun primer (*primary building units*, PBU) yang dapat digabungkan dengan berbagai cara untuk membentuk unit pembangun sekunder (*secondary building units*, SBU). Contohnya struktur cincin-4 (dibangun oleh 4 unit TO_4), ganda cincin-4 (dibangun oleh dua cincin-4) dan sebagainya. Penomoran SBU dihubungkan dengan jumlah ikatan tetrahedron TO_4 (Baerlocher, 2001).

2.3 Zeolit NaP

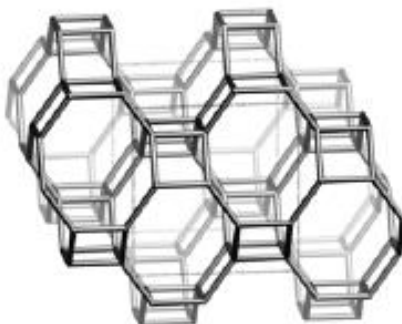
Zeolit NaP yang merupakan mineral yang terdiri dari muatan negatif, kerangka tiga dimensi tetrahedral SiO_4 dan AlO_4 yang bergabung membentuk oktahedral. Salah satu jenis zeolit ini mempunyai susunan kerangka (*framework*) tipe gismondine (GIS) dengan memotong saluran $0.31 \text{ nm} \times 0.44 \text{ nm}$ dalam $[100]$ dan $0.26 \text{ nm} \times 0.49 \text{ nm}$ dalam $[010]$ (Albert, 1998). Zeolit NaP memiliki ukuran pori yang lebih kecil daripada zeolit tipe FAU, LTA, dan MF1, sehingga banyak digunakan untuk pemisahan molekul kecil gas (Brown, 1989; Kakansson, 1990), dapat digunakan untuk menghilangkan racun dan limbah radioaktif seperti Cs, Sr, Ba, Pb, U, logam berat, menghilangkan ammonium dari air limbah, ekstraksi natrium air laut, dan deterjen ramah lingkungan (Atkins, 1995; Nerry, 2003).

2.3.1 Sintesis Zeolit NaP

Pada umumnya, zeolit NaP dapat disintesis dengan berbagai macam prekursor dan berbagai macam metode. Zeolit NaP dapat disintesis dengan kaolin (Sathuphunya dkk., 2002) dengan Na_2SiO_2 (Murayama dkk., 2002) dan dengan abu layang (Kazemian dkk., 2010). Metode yang banyak digunakan seperti teknik sol-gel, hidrotermal, pemanasan microwave. Menurut penelitian yang dilakukan oleh Hansen (1993), zeolit NaP memiliki komposisi molar $\text{Al}_2\text{O}_3 : 2.2 \text{ SiO}_2 : 5.28 \text{ NaF} : 105.6 \text{ H}_2\text{O}$. Zeolit NaP juga banyak ditemukan sebagai pengator dalam sintesis zeolit A, X, dan mordanit (Hansen dkk., 1993).

Beberapa peneliti telah berhasil mensintesis zeolit NaP oleh Bohra dkk. (2013) menggunakan abu sekam padi dengan komposisi molar $2,1 \text{ Na}_2\text{O} : \text{Al}_2\text{O}_3 : 3,8 \text{ SiO}_2 : 50\text{H}_2\text{O}$ dengan melalui proses hidrotermal pada suhu 100°C selama 48, 72 dan 96 jam. Zeolit NaP juga telah berhasil disintesis oleh Hildebrando

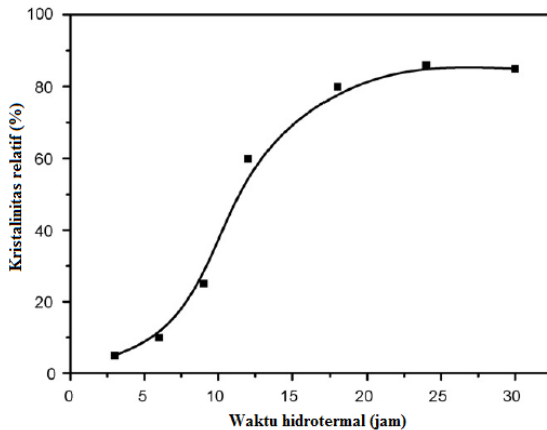
dkk. (2014) menggunakan limbah kaolin dan limbah metakaolin dari Amazon dengan rasio molar $3\text{Na}_2\text{O} : \text{Al}_2\text{O}_3 : 3,5\text{-}5 \text{SiO}_2 : \text{H}_2\text{O}$ yang dihidrotermal pada suhu 90, 95, 100 dan 115°C selama 20 jam dan dihidrotermal pada suhu 90°C selama 6, 20, 24 dan 48 jam. Sintesis tersebut menghasilkan zeolit NaP kristalisasi pada hidtotermal 100°C selama 20 jam dengan rasio Si/Al yang rendah. Berbeda dengan Aldhari dkk. (2016) mensintesis zeolit NaP dari abu layang dengan metode *thermo-sonochemical*.



Gambar 2.4 Kerangka tipe gismondine (Win, 2004)

2.3.2 Pengaruh Waktu Hidrotermal

Proses hidrotermal mengacu pada reaksi heterogen dalam pelarut berair atau *mineralizer* di bawah tekanan tinggi dan pengkondisian suhu untuk melarutkan dan merekristalisasi bahan yang relatif tidak larut dalam kondisi biasa. Morey dan Niggli (1913) mendefinisikan metode hidrotermal sebagai metode yang didalamnya terdapat komponen dikenai gaya air yang umumnya pada suhu dekat walaupun seringkali jauh diatas suhu kritis air (sekitar 370°C) dalam keadaan tertutup rapat (vakum) dan dibawah tekanan tinggi yang sesuai.



Gambar 2.5 Pengaruh waktu hidrotermal terhadap kristalinitas zeolit NaP (Wang dkk., 2007)

Sintesis dengan metode hidrotermal dapat meningkatkan kemampuan efektivitas solvasi air, meningkatkan kelarutan reaktan, dan mengaktifkan reaksi dari material sumber yang mengarah kepada penataan ulang dan peleburan dari gel primer yang terbentuk pada tahap pertama serta mengakibatkan peningkatan nukleasi dan laju kristalisasi. Metode hidrotermal berpengaruh terhadap pembentukan zeolit dan kristalisasinya. Melalui peningkatan waktu hidrotermal ini, dapat diketahui pula perubahan ukuran partikel (Kartimi dkk., 2012), pertumbuhan kristal (Wang dkk., 2007), serta perubahan fasa yang terbentuk (Rustam, 2013). Fasa dengan kesetimbangan termodinamika yang kurang akan mengkristal pertama kali dan akan menjadi fasa yang stabil seiring bertambahnya waktu (Xu dkk., 2007). Zeolit mencapai tahap metastabil secara termodinamika. Misalnya, dengan waktu kristalisasi yang berkelanjutan, zeolit A (LTA) dan zeolit X (FAU) akan larut sehingga membentuk zeolit sodalit (SOD) dan P (GIS), masing-masing dalam gel alkali aluminosilikat

(Johnson dan Arshad, 2014). Gambar 2.5 merupakan aluran hubungan antara waktu hidrotermal dengan kristalinitas. Pada umumnya semakin lama waktu hidrotermal dalam sintesis zeolit kristalinitasnya akan semakin meningkat dan relatif konstan setelah mencapai titik maksimum (Wang dkk., 2007).

2.4 *Leaching*

Leaching dalam ilmu kimia disebut sebagai pelarutan padatan oleh larutan tertentu. *Leaching pada* umumnya melibatkan pelarut yang selektif dengan atau tanpa difusi. Metode yang digunakan untuk *leaching* biasanya ditentukan oleh jumlah konstituen yang akan dilarutkan, distribusi konstituen dalam padatan, dan sifat padatan dan ukuran partikel. Mekanisme proses *leaching* pada umumnya adalah zat terlarut ditransfer dari larutan ke permukaan padatan kemudian berdifusi kedalam padatan, pelarut yang berada didalam padatan akan larut oleh zat terlarut kemudian terdifusi menjadi campuran solut-solven ke permukaan padatan dan ditransfer keluar/ kedalam larutan zat terlarut (Geankoplis, 2003). Terdapat beberapa faktor yang mempengaruhi *leaching*, diantaranya: Ukuran partikel, Pelarut, Suhu, Pengadukan (Budhikarjono, 1996).

Dalam proses *leaching* dapat dilakukan dengan menggunakan asam organik seperti asam oksalat, asam sitrat, dan asam askorbat. Dapat juga digunakan dengan asam anorganik seperti hidrofluorat, asam hidroklorida, asam sulfat, dan asam perklorat (Tuncuk, dkk., 2013) 1x

Peneliti Panda dkk. (2010) juga telah melakukan penelitian mengenai *leaching* asam menggunakan asam sulfat pada kaolin untuk meningkatkan Si/Al dengan variasi konsentrasi yang berbeda. Kaolin yang digunakan berasal dari India yang mempunyai kandungan Si/Al sebesar 0,65. Berdasarkan penelitian

tersebut didapatkan Si/Al sebesar 0,81; 1,3; 1,63 dan 8,09 untuk masing-masing konsentrasi asam sulfat 1, 3, 5, dan 10 M.

Tabel 2.1 Hasil *leaching* dari kaolin untuk menghilangkan Fe

Reagen dalam <i>Leaching</i>	Parameter	Fe yang hilang (%)	Referensi
Asam Sulfat	Temperatur, pH, Waktu <i>Leaching</i> , dan Kecepatan Stirring	98	Veglio dkk. (1993)
Asam Sulfat, Asam Oksalat, Asam Aksorbat	Temperatur, Kecepatan Stirring, Konsentrasi Asam dan Mineral	43-45	Veglio dkk. (1993)
Asam Sitrat, Asam Glukonat, Asam Oksalat	Konsentrasi Asam dan pH	68	Cameselle dkk. (1997); Veglio dkk. (1993)
Thiourea	Konsentrasi Asam, Temperatur, dan Waktu <i>Leaching</i>	35-45	Veglio dkk. (1998)
Asam Asetat, Asam Format, Asam Sitrat, Asam Aksorbat, Asam Suksinat, Asam Ttrat, Asam Oksalat	Konsentrasi Asam, Temperatur, dan Waktu <i>Leaching</i>	73	Ambikadevi dan Lalithambika (2000)

Asam Sitrat, Asam Malonat, Asam Oksalat, Asam Oksalat + EDTA	Konsentrasi Asam, Temperatur, Kecepatan Stirring, dan Waktu <i>Leaching</i>	79	Saikia dkk. (2003)
Asam Oksalat	Konsentrasi Asam, Temperatur, dan Waktu <i>Leaching</i>	45	Calderon dkk. (2003)
Asam Oksalat	Konsentrasi Asam, Temperatur, pH, dan Waktu <i>Leaching</i>	20	Lee dkk. (2006)
Asam Oksalat, Asam Sitrat, Asam Asetat, Asam Glukonat	Konsentrasi Asam, Temperatur, dan Waktu <i>Leaching</i>	34.5	Tuncuk dkk. (2010)

2.5 Karakterisasi Padatan

2.5.1 X-Ray Fluorescence (XRF)

Uji XRF bertujuan menentukan jenis dan presentase komponen unsurunsur penyusun braket sebelum direndam dalam saliva buatan. XRF merupakan teknik analisa non-destruktif yang digunakan untuk identifikasi serta penentuan konsentrasi elemen yang ada pada sampel padat, bubuk ataupun cair. Secara umum, XRF spektrometer, mengukur panjang gelombang komponen material secara individu, dari emisi fluoresensi yang dihasilkan sampel saat diradiasi dengan sinar-X (West, 1984).

Metode XRF secara luas digunakan untuk menentukan komposisi unsur suatu material. Karena metode ini cepat dan tidak

merusak sampel, metode ini dipilih untuk aplikasi di lapangan dan industri untuk kontrol material. Tergantung pada penggunaannya, XRF dapat dihasilkan tidak hanya oleh sinar-X tetapi juga sumber eksitasi primer yang lain seperti partikel alfa, proton atau sumber elektron dengan energi yang tinggi.

Keunggulan dari metode ini adalah sampel yang dianalisis tidak perlu dirusak, memiliki akurasi yang tinggi, dapat menentukan unsur dalam material tanpa adanya standar, serta dapat menentukan kandungan mineral dalam bahan biologik maupun dalam tubuh secara langsung.

2.5.2 Difraksi sinar-X (*X-Ray Diffraction* / XRD)

Difraksi Sinar-X merupakan salah satu metode karakterisasi material yang sangat penting dan membantu untuk mengidentifikasi fasa kristalin atau struktur kristal material padatan seperti ukuran kristalin, dan komposisi fasa. XRD menggunakan sinar-X sebagai sumber sinar dalam teknik karakterisasinya. Sinar-X adalah bagian dari radiasi gelombang elektromagnetik dengan panjang gelombang berkisar antara 10^{-10} m sampai dengan 10^{-8} m ($1-100 \text{ \AA}$), terletak diantara panjang gelombang sinar gamma (γ) dan sinar ultraviolet. Namun hanya $0,3 - 0,25 \text{ \AA}$ yang digunakan sebagai sumber sinar untuk difraksi sinar-X. Sinar-X dihasilkan akibat adanya perbedaan potensial antara filamen yang bertindak sebagai katoda dengan anoda berupa logam pada suatu ruang vakum, sehingga terjadi adanya pergerakan elektron dengan energi besar diantara kedua elektroda tersebut (West, 1984).

Prinsip yang digunakan dalam instrumen XRD berdasarkan pendekatan pada hukum Bragg yang menyatakan jika suatu sinar-X ditembakkan pada permukaan kristal dengan sudut θ maka sinar-X tersebut akan dipantulkan oleh lapisan yang ada pada

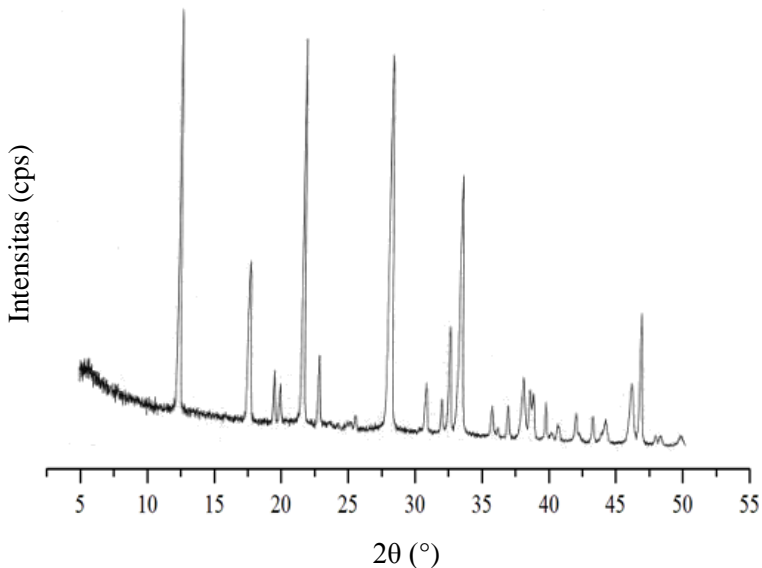
permukaan dengan sudut pantul yang sama dengan sudut datangnya. Secara matematik, hukum Bragg dinotasikan dalam persamaan berikut:

$$n\lambda = 2d \sin \theta \dots\dots\dots(2.1)$$

Dimana: n adalah bilangan bulat suatu fasa, λ adalah panjang gelombang sinar-X, d adalah jarak antara dua bidang kisi dan θ adalah sudut datang pada bidang normal. Berdasarkan persamaan 2.3, difraksi sinar-X terjadi ketika pantulan dari sinar-X memiliki sudut yang memenuhi hukum Bragg. Apabila sudut pantul melewati sudut tersebut maka akan terjadi interferensi destruktif (Cullity, 1956).

Karakterisasi menggunakan XRD banyak digunakan pada padatan kristalin karena padatan kristalin memiliki atom penyusun dengan susunan teratur sehingga membentuk bidang-bidang dengan jarak antar bidang tertentu dan tiap atomnya dapat memantulkan berkas sinar-X. Padatan amorf memiliki atom-atom penyusun yang tersusun acak sehingga tidak akan memunculkan pola difraksi yang khas karena strukturnya yang tidak beraturan (Prasetyoko dkk., 2016).

Hasil dari karakterisasi dengan XRD ini digambarkan dengan sebuah difraktogram yang menampilkan plot sudut 2θ dengan intensitas. Pada gambar 2.6 di bawah ini merupakan contoh dari hasil analisa dari zeolit NaP menurut Hansen (1993). Puncak khas zeolit NaP pada difraktogram XRD tersebut muncul pada $2\theta = 12,5; 17,8; 21,7; 28,2; 32,5 ;33,4; 38,1; 46,2^\circ$. Puncak tertinggi dari kristal zeolit NaP tersebut muncul pada $2\theta = 12^\circ$.



Gambar 2.6 Pola difraktogram XRD zeolite NaP (Hansen dkk., 1993)

2.5.3 Spektrokopi *Fourier Transform Infrared* (FTIR)

FTIR digunakan untuk mengidentifikasi material, menentukan komposisi dari campuran, dan membantu memberikan informasi dalam memperkirakan struktur molekul. Sampel yang digunakan biasanya berupa material dalam keadaan padat, cair, atau gas. Analisa dengan metode ini didasarkan pada fakta bahwa molekul memiliki frekuensi spesifik yang dihubungkan dengan vibrasi internal dari atom gugus fungsi. Ketika sampel diletakkan dalam berkas radiasi IR, sampel mengabsorpsi radiasi pada frekuensi yang sesuai dengan frekuensi vibrasional molecular dan meneruskan seluruh frekuensi yang lain. Spektrometer IR mengukur frekuensi dari radiasi yang terabsorpsi, dan plot hasil dari energi terabsorpsi versus frekuensi

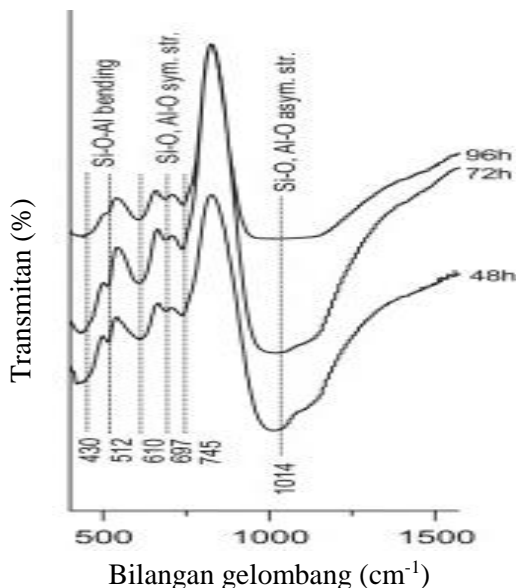
dikenal sebagai spectrum IR dari material yang dianalisis. Identifikasi senyawa dapat dilakukan karena perbedaan struktur kimia material akan memberikan vibrasi karakteristik dan menghasilkan spectra IR yang unik, yaitu, daerah sidik jari untuk tiap-tiap material. Keuntungan dari metode FTIR ini yaitu radiasi sumber sinat yang lebih tinggi, perbandingan sinyal atau noise ditingkatkan, mengurangi waktu pengukuran, dan akurasi pengukuran yang lebih tinggi dengan spektrometer dispersif cahaya konvensional (Sibilia, 1996).

Prinsipnya dari FTIR ketika suatu material berinteraksi dengan sinar inframerah, ikatan dalam molekul akan mengalami vibrasi ulur (*stretching*) atau bending (*tekuk*). Hasilnya, sinar inframerah akan diabsorb oleh gugus fungsi pada rentang panjang gelombang yang spesifik. Keunggulan spektroskopi FTIR yaitu radiasi sumber sinar lebih tinggi, perbedaan sinyal dan noise ditingkatkan, mengurangi waktu pengukuran dan akurasi pengukuran yang lebih tinggi (Sibilia, 1996). Selain itu, spektrometer FTIR juga memiliki sensitivitas yang baik, kalibrasi panjang gelombang lebih akurat dan desain mekanik yang sederhana (Skoog dkk., 1998).

Hasil analisis spektroskopi inframerah digambarkan dalam bentuk spektrum yang menampilkan plot absorbansi atau transmittan energi dari sinar yang dipancarkan versus frekuensi. Analisis spektroskopi inframerah standar dilakukan pada rentang frekuensi $7000\text{--}400\text{ cm}^{-1}$, tetapi dapat pula mencapai 50 cm^{-1} , dengan menggunakan tambahan sumber sinar, optik, dan detektor. (Sibilia, 1996).

Pada Gambar 2.7 menunjukkan contoh spektra inframerah dan puncak serapan zeolit NaP yang disintesis oleh Bohra (2013) pada suhu $100\text{ }^{\circ}\text{C}$ selama 48, 72 dan 96 jam. Pada spektra tersebut, terdapat puncak serapan pada 1014 cm^{-1} yang merupakan serapan

dari vibrasi ulur asimetris Al-O-Si. Puncak serapan pada 610 cm^{-1} , 697 cm^{-1} , dan 745 cm^{-1} yang merupakan serapan dari vibrasi ulur simetris kerangka Al-O-Si. Puncak serapan pada 578 cm^{-1} menunjukkan vibrasi eksternal cincin ganda yang berhubungan dengan struktur FAU. Pita serapan pada $430\text{--}512\text{ cm}^{-1}$ menunjukkan vibrasi tekuk simetris kerangka TO_4 (T – Si, Al). 1x



Gambar 2.7 Spektra inframerah zeolit NaP (Bohra dkk., 2013)

2.5.4 Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersive X-ray (SEM-EDX)

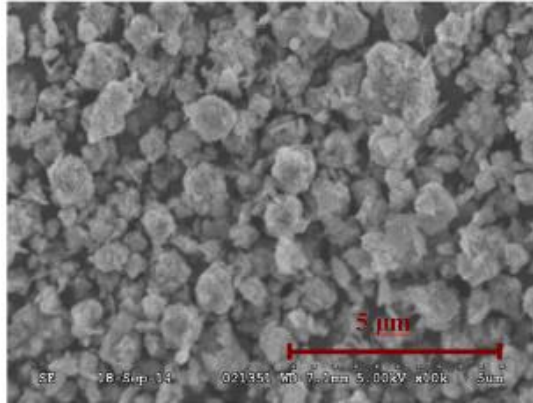
Scanning Electron Microscopy (SEM) merupakan alat sejenis mikroskop yang digunakan untuk melihat benda dengan menggunakan elektron sebagai pengganti dari cahaya (Gedde, 1995). Kelebihan SEM terletak pada fleksibilitas yang melekat karena pembangkitan sinyal ganda, proses pembentukan gambar

yang mudah, rentang pembesaran yang lebar, dan bidang kedalaman yang luar biasa. Berkas sinar elektron diperoleh dari penembak elektron, gelombang elektron yang terkondensasi pada lensa kondensor akan terfokus sebagai titik yang jelas oleh lensa objektif. *Scanning coil* yang telah memperoleh energi akan menyediakan medan magnetik bagi sinar elektron yang mengenai sampel menghasilkan elektron sekunder dan akan dikumpulkan oleh detektor sekunder. Foto yang dihasilkan terdiri dari ribuan titik dengan berbagai intensitas pada permukaan *Cathode Ray Tube* sebagai topografi gambar. Tempat sampel diletakkan dalam ruang vakum untuk menghilangkan udara ataupun gas yang ada dan dapat bereaksi dengan sinar elektron. (Gedde, 1995).

Prinsip kerja dari SEM adalah elektron ditembakkan dari katoda filamen ke arah sampel. Saat terjadi interaksi antara elektron dengan sampel, elektron kehilangan sejumlah energi sehingga terjadi pemantulan dan emisi elektron. Hasil pemantulan dan emisi elektron akan terdeteksi oleh detektor yang dapat divisualisasikan menjadi gambar morfologi dari suatu krsital. Tipe-tipe sinyal yang dapat dihasilkan oleh SEM dapat berupa *Secondary Electron* (SE), *Back-Scattered Electron* (BSE), dan sinar X. SEM dapat merekam permukaan suatu material dengan perbesaran sekitar 10-200.000x dengan ketajaman fokus yang tinggi sehingga permukaan yang kasar dapat digambarkan (Smith dan Oatley, 1995).

SEM dapat dilengkapi dengan *energy dispersive X-Ray* (EDX), yaitu instrumen yang berguna untuk mendapatkan informasi tentang komposisi unsur yang terdapat pada sampel padatan (West, 1984). Analisis EDX didasarkan pada interaksi material dengan radiasi elktromagnetik yang dihasilkan ketika ditembak oleh berkas elektron. Sampel yang ditembak dengan berkas elektron akan memancarkan radiasi sinar-X yang nilai

energinya dapat diukur oleh EDX. Energi sinar-X ini sesuai dengan perbedaan energi antar kedua kulit suatu unsur. Sehingga, komposisi unsur dari suatu sampel dapat diketahui (Behera, 2009).



Gambar 2.8 Mikrograf SEM zeolit NaP (Behin dkk., 2015)

Contoh mikrograf SEM zeolit NaP ditunjukkan oleh Gambar 2.8 yang merupakan hasil penelitian yang dilakukan oleh Behin (2015). Zeolit NaP hasil sintesis pada mikrograf tersebut memiliki bentuk kristal bola tidak beraturan dengan ukuran partikel kurang dari 5 µm.

BAB III

METODOLOGI PENELITIAN

3.1 Alat dan Bahan

3.1.1 Alat

Peralatan yang digunakan dalam penelitian ini adalah gelas beaker, botol *High Density Polyethylene* (HDPE), kertas pH, kertas saring, botol semprot, *magnetic stirrer*, timbangan analitik, corong, labu ukur, labu leher tiga, kondensor, *hotplate*, dan oven. Instrumen yang digunakan untuk sampel dan hasil sintesis adalah PANanalytical Minipal 4 untuk *X-ray Fluorescence* (XRF), Philips Xpert MPD untuk *X-ray Diffraction* (XRD), Shimadzu Instrument Spectrum One 8400S untuk spektroskopi *Fourier Transform Infrared* (FTIR), Zeiss EVO MA 10 dan BRUKER 129 untuk *Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersive X-ray* (SEM-EDX).

3.1.2 Bahan

Bahan-bahan yang digunakan pada penelitian ini adalah kaolin Bangka Belitung, aqua demineralisasi (aqua DM), natrium hidroksida (NaOH, Merck, 99%), dan asam sulfat (H₂SO₄, Pal Chemistry, 98%).

3.2 Prosedur Penelitian

3.2.1 *Leaching*

Metode *leaching* kaolin mengacu pada penelitian yang dilakukan Panda dkk. (2009). *Raw material* yang digunakan sebagai sumber Si dan Al adalah kaolin Bangka Belitung. Kaolin sebanyak 40 gram direfluks pada suhu 110°C dengan 400 mL asam sulfat 4 M dengan variasi waktu refluks selama 4, 8, dan 12 jam. Kemudian hasil refluks didinginkan, disaring, dicuci dengan akuademin hingga pH \pm 7 dan dioven selama 1,5 jam. Selanjutnya,

padatan yang telah kering ditimbang dan dikarakterisasi menggunakan XRF (*X-ray Fluorescence*) dan FTIR (*Fourier Transform Infrared*).

3.2.2 Sintesis Zeolit NaP

Metode zeolit mengacu pada penelitian yang dilakukan oleh Bohra dkk. (2013). Komposisi rasio molar zeolit NaP yang dibuat yaitu $2,1\text{Na}_2\text{O} : \text{Al}_2\text{O}_3 : 3,8\text{SiO}_2 : 50\text{H}_2\text{O}$. Natrium hidroksida sebanyak 1,68 gram dilarutkan dalam aquademin sebanyak 9 gram dalam botol HDPE, ditambahkan serbuk *leaching* kaolin sebanyak 4,37 gram, kemudian distirer selama 15 jam. Selanjutnya, dilakukan kristalisasi melalui proses hidrotermal pada suhu 100°C dengan variasi waktu 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam. Setelah proses hidrotermal selesai, botol HDPE didinginkan dan hasil sintesis disaring untuk memisahkan padatan dan filtratnya. Padatan yang diperoleh dicuci dengan akuademin hingga pH 7 dan dikeringkan pada suhu 80°C selama 4 jam. Selanjutnya, padatan yang telah kering ditimbang dan dikarakterisasi menggunakan XRD (Difraktometer Sinar-X), FTIR (*Fourier Transform Infrared*), dan SEM-EDX (*Scanning Electron Microscopy – Energy Dispersive X-ray*).

3.3 Karakterisasi Hasil Sintesis

3.3.1 X-ray Fluorescence (XRF)

Karakterisasi dengan XRF dilakukan pada sampel awal kaolin dan kaolin setelah dileaching untuk mengetahui unsur yang terkandung dalam kaolin serta untuk menentukan kadar persen dari tiap senyawa.

3.3.2 Difraksi Sinar-X (XRD)

Padatan hasil sintesis yang didapatkan dikarakterisasi menggunakan difraksi sinar-X dengan $\text{CuK}\alpha$ pada panjang

gelombang 1,5406 Å, tegangan 40 kV, kuat arus 30 mA dan rentang sudut $2\theta = 5-50^\circ$. Hasil karakterisasi difraksi sinar-X digunakan untuk menentukan fase-fase yang terdapat pada padatan. Sebanyak ± 1 gram padatan hasil sintesis dihaluskan kemudian dimasukkan ke dalam *sample holder* hingga padat dan permukaannya rata. Kemudian padatan diukur difraksinya dengan radiasi $\text{CuK}\alpha$ ($\lambda=1,5405\text{\AA}$) pada 40 kV dan 30 m.

3.3.3 Spektroskopi *Fourier Transform Infrared* (FTIR)

Hasil sintesis dikarakterisasi dengan spektroskopi inframerah untuk mengidentifikasi gugus fungsi yang terdapat dalam metrial. Karakterisasi padatan dilakukan dengan teknik pelet KBr menggunakan instrumen FTIR Shimadzu Spectrum One 8400S. Sebanyak 0,1 gram sampel padatan hasil sintesis dicampur dengan padatan KBr, kemudian digerus. Campuran padatan selanjutnya ditekan hingga membentuk pelet kemudian diletakkan pada tempat sampel. Pelet yang telah terbentuk kemudian diukur serapan vibrasinya pada bilangan gelombang 4000-400 cm^{-1} .

3.3.4 Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersive X-ray (SEM-EDX)

Morfologi padatan kristal sintesis diamati dengan SEM, sedangkan EDX untuk mengetahui komposisi unsur-unsur yang terkandung. Instrumen yang digunakan adalah SEM ZEISS EVO MA 10 dan EDX BRUKER 129 EV. Preparasi sampel dilakukan dengan *coating* menggunakan Pd. Sampel yang dianalisis terlebih dahulu diletakkan pada alas *carbon tape* dan dilakukan *coating* dengan Pd selama 15 menit pada tekanan 6×10^{-2} mBar.

“Halaman ini sengaja dikosongkan”

BAB IV

HASIL DAN PEMBAHASAN

Pada penelitian ini, telah dilakukan sintesis zeolit NaP dari kaolin yang telah *dileaching* dengan metode hidrotermal. Kaolin *dileaching* dengan variasi waktu 4, 8, dan 12 jam, serta metode hidrotermal dengan variasi waktu 3, 6, 12, 24, 48, dan 72 jam. Hal tersebut dilakukan untuk mempelajari pengaruh *leaching* terhadap produk sintesis yang dihasilkan. Hasil kaolin setelah *leaching* dikarakterisasi dengan *X-Ray Fluoresence* (XRF) untuk mengetahui persen kandungan pada kaolin. Hasil sintesis juga dikarakterisasi dengan *X-Ray Diffraction* (XRD) untuk mengetahui fasa, kristalinitas, dan ukuran partikel kristal, lalu dikarakterisasi dengan *Fourier Transform Infrared* (FTIR) untuk mengetahui gugus fungsi yang terdapat pada kristal, dan dikarakterisasi dengan *Scanning Electron Microscopy Energy Dispersive X-Ray* (SEM-EDX) untuk mengetahui morfologi dan kandungan unsur yang ada didalam padatan hasil sintesis.

4.1 *Leaching*

Pada penelitian ini, dilakukan *leaching* kaolin dengan larutan asam sulfat 4 M dengan variasi waktu *leaching* 4, 8, dan 12 jam yang berfungsi menghindari terjadinya agregat partikel pada kaolin, menghilangkan pengotor, sehingga berubah komposisi kimia dan struktur kaolinnya (Belver dkk., 2002). Pada proses ini digunakan bahan kaolin sebagai sumber Si dan Al serta asam sulfat sebagai pelarut dalam *leaching*. Metode *leaching* ini mengacu pada penelitian yang dilakukan Panda dkk. (2009) dimana asam sulfat 4 M dimasukan kedalam labu leher tiga dan direfluks pada suhu 110°C. Refluks merupakan salah satu teknik yang melibatkan kondensasi uap dan kembali kondesat ke sistem yang awal (Panda

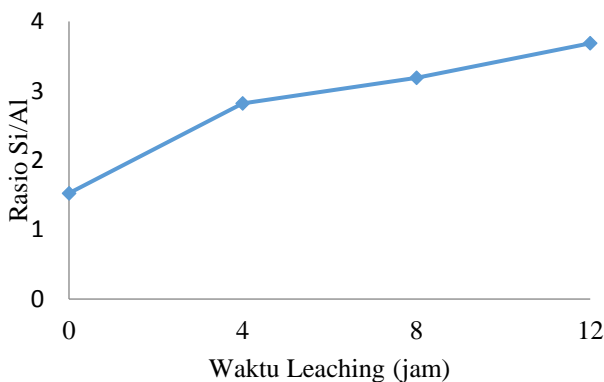
dkk. 2009). Hal tersebut dilakukan agar larutan dalam labu tersebut tidak ada yang hilang. Lalu dimasukkan *magnetic stirrer* kedalam labu leher tiga yang berfungsi untuk mencampurkan campuran tersebut. Setelah suhu dalam sistem 110°C dan stabil, dimasukkan kaolin kedalam labu leher tiga dan direfluks. Variasi waktu refluks yang digunakan sebesar 4, 8, dan 12 jam.

Tabel 4.1 Komposisi dan rasio Si/Al pada kaolin awal dan *leaching* kaolin

	Komposisi (%)			
	Kaolin Awal	Waktu <i>Leaching</i>		
		4 Jam	8 Jam	12 Jam
SiO ₂	54,9	65,7	73,3	77,4
Al ₂ O ₃	36	23,3	23	21
Fe ₂ O ₃	3,37	0,81	0,401	0,294
K ₂ O	2,88	1,57	1	0,717
CaO	0,58	1,1	0,15	0,081
TiO ₂	0,551	1,05	0,14	0,13
Rasio Si/Al	1,29	2,39	2,70	3,13

Hasil analisis XRF pada Tabel 4.1 dan Gambar 4.1 menunjukkan bahwa rasio Si/Al semakin meningkat dengan meningkatnya waktu *leaching*. Rasio Si/Al kaolin awal sebesar 1,53 meningkat menjadi 2,82; 3,18; dan 3,68 untuk masing-masing waktu *leaching* 4, 8, dan 12 jam. Hasil tersebut sesuai dengan penelitian yang dilakukan oleh Panda, dkk. (2010), dimana rasio Si/Al kaolin murni sebesar 0,65 meningkat menjadi 0,81; 1,3; 1,63; dan 8,09 untuk variasi waktu *leaching*.

Pada Tabel 4.1 dapat diketahui bahwa masih terdapat senyawa lainnya seperti Fe, K, Ca, dan Ti pada kaolin awal dengan persen komposisi tertinggi yaitu Fe_2O_3 . Dari hasil XRF menunjukkan bahwa kadar dari senyawa selain Si dan Al semakin turun dengan meningkatnya waktu *leaching*. Hasil tersebut sesuai dengan penelitian Tuncuk, dkk. (2013) dimana semakin berkurangnya Fe dan senyawa lainnya dengan meningkatnya waktu *leaching*.

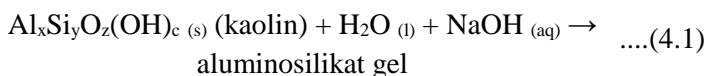


Gambar 4.1 Aluran hubungan waktu *leaching* kaolin terhadap rasio Si/Al

4.2 Sintesis Zeolit NaP

Pada penelitian ini, sintesis zeolit NaP berasal dari campuran kaolin yang telah *dileaching*, NaOH, dan aqua demineralisasi. Kaolin yang setelah *dileaching* juga lebih murni kandungannya dan mudah beraksi sehingga pembentukan inti kristal akan lebih sempurna. Sumber alkali yaitu Na^+ berasal dari NaOH, serta aqua demineralisasi sebagai sumber H_2O . Tahap awal yang dilakukan, NaOH pelet dilarutkan terlebih dahulu dengan

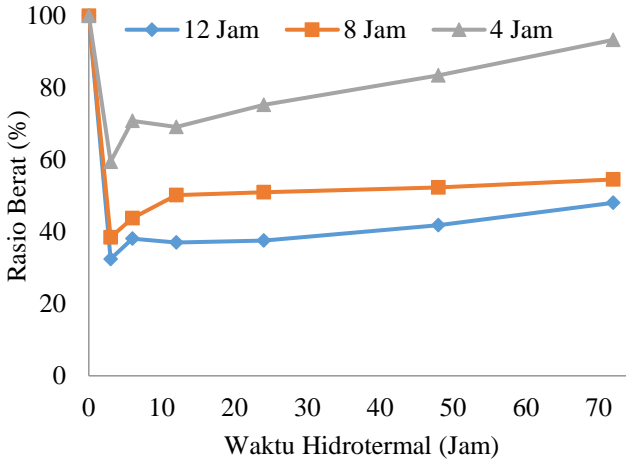
aqua demineralisasi dalam botol HDPE menggunakan *magnetic stirrer* pada suhu ruang. NaOH pada tahap ini berfungsi sebagai agen mineralisasi yang dapat meningkatkan kelarutan silika dan alumina sehingga kristalisasi akan menjadi lebih cepat (Cejka dkk., 2010; Chareonpanich dkk., 2004). Setelah NaOH pelet tercampur sempurna, dimasukan kaolin yang telah *dileaching* dan di *stirrer* selama 15 jam pada suhu ruang. Pada tahap ini terjadi interaksi antara garam silikat dan aluminat membentuk aluminosilikat.



Tahap berikutnya dilakukan kristalisasi melalui proses hidrotermal pada suhu 100°C dengan variasi waktu hidrotermal 3, 6, 12, 24, 48, dan 72 jam. Pada proses ini terjadi penyempurnaan kristal yang dibentuk oleh spesi silikat dan aluminat. Struktur molekular gel aluminosilikat primer diubah menjadi aluminosilikat sekunder. Setelah proses hidrotermal, hasil sintesis didinginkan dan disaring untuk memisahkan padatan dan filtratnya. Padatan tersebut dicuci dengan akuademineralisasi hingga pH 7 untuk menghilangkan sisa NaOH. Setelah itu, padatan dikeringkan pada suhu 80°C selama 4 jam untuk mengeliminasi pelarut air yang tersisa. Padatan yang telah kering dikarakterisasi dengan difraksi sinar-X (XRD) dan spektroskopi inframerah (FTIR).

Aluran presentase rasio berat terhadap waktu hidrotermal ditampilkan Gambar 4.2 menunjukan pada waktu 3 jam terjadi penurunan sangat signifikan. Hal tersebut karena pada sampel terdapat kandungan air yang belum bereaksi, sehingga ketika dicuci dan dikeringkan, air akan hilang. Pada waktu 6 jam terjadi peningkatan karena mulai terbentuknya kristalin. Semakin meningkatnya waktu kristalinitas maka kecepatan dan

pertumbuhan inti semakin cepat sehingga kristalinitas menjadi meningkat.

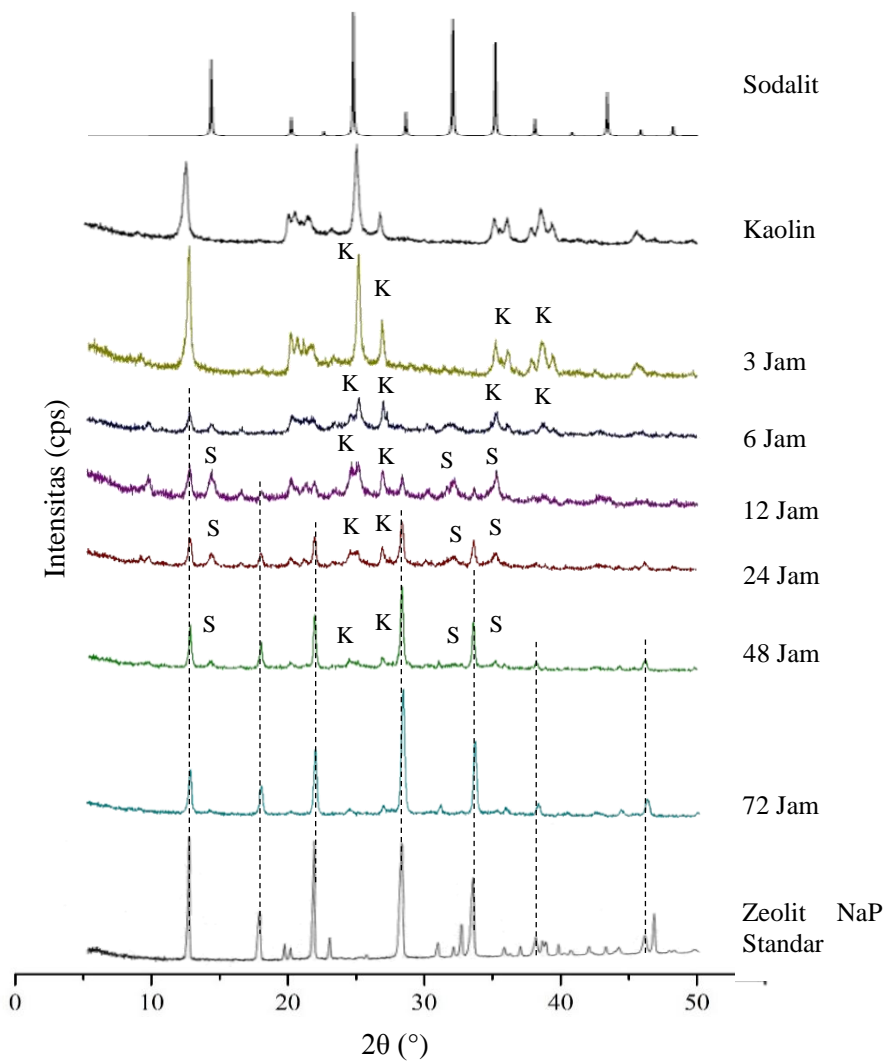


Gambar 4.2 Aluran hubungan persentase rasio berat pada variasi waktu *leaching* kaolin 4, 8, dan 12 jam terhadap waktu hidrotermal

4.3 Hasil Karakterisasi Padatan

4.3.1 Difraksi Sinar-X (XRD)

Karakterisasi difraksi sinar-X (XRD) dilakukan pada $2\theta = 5-50^\circ$ untuk mengetahui fase yang terdapat di dalam padatan. Pada pola difraktogram yang diperoleh dapat dilakukan identifikasi fasa kristal dan intensitas dari sampel dengan variasi waktu *leaching* 4, 8, dan 12 jam dan variasi waktu hidrotermal 3, 6, 12, 24, 48, dan 72 jam. Hasil difraktogram XRD setiap variasi ditunjukkan pada Gambar 4.3, Gambar 4.5, dan Gambar 4.7.



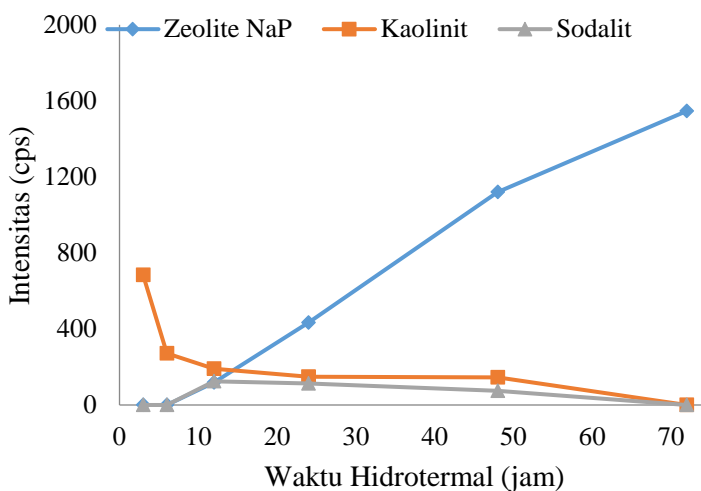
Gambar 4.3 Pola difraktogram XRD sintesis NaP dengan variasi waktu hidotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam dan waktu *leaching* 4 jam

Tabel 4.2 Puncak dengan sudut 2θ hasil sintesis dengan variasi waktu hidrotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam dan waktu *leaching* 4 jam

Sampel	2θ (°)		
	Zeolit NaP	Sodalit	Kaolinit
3 Jam	-	-	12,45; 19,95; 20,44; 24,99; 26,7: 38,48
6 Jam	-	-	12,57; 20,02; 25,06; 26,84
12 Jam	12,5; 17,8; 21,7; 28,2; 33,5	14,11; 32,03; 35,15	20,01; 25,01; 26,74
24 Jam	12,7; 17,8; 21,8; 28,2; 33,5	14,15; 32,1; 35,19	25,03; 26,80
48 Jam	12,5; 17,7; 21,7; 28,1; 33,4: 38,1: 46,2	13,98; 32,01; 35,1	24,88; 26,66
72 jam	12,6; 17,8; 21,7; 28,2; 33,4: 33,5; 38,1; 46,1	-	-

Gambar 4.3 merupakan pola difraktogram XRD sampel zeolit NaP melalui variasi waktu *leaching* 4 jam dengan variasi waktu hidrotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam yang menunjukkan spesifikasi puncak karakteristik zeolit NaP, sebagian muncul puncak selain zeolit NaP seperti fase kaolinit dan sodalit. Adanya fase kaolinit (disimbolkan dengan huruf K) yang teridentifikasi pada $2\theta = 12,45; 19,95; 20,44; 24,99; 26,7; 35,08; 38,48$ dan $45,42^\circ$. Hasil tersebut sesuai dengan penelitian yang dilakukan oleh Kahraman dkk. (2005), dimana puncak khas kaolin terdapat pada $2\theta = 12,52; 25,48; \text{ dan } 38,3^\circ$. Puncak karakteristik kaolinit

semakin kecil dengan bertambahnya waktu hidrotermal. Hal tersebut mengindikasikan bahwa kaolin telah bereaksi secara sempurna. Terdapat juga fase lainnya yaitu fase sodalit (disimbolkan dengan huruf S) teridentifikasi pada $2\theta = 14,15; 32,1; 35,19^\circ$. Pembentukan sodalit tersebut sesuai pada penelitian Li dkk., (2015) yang disintesis dari kaolin terobservasi pada sudut refleksi $2\theta = 14,16; 24,65; 28,53; 31,99$ dan $35,13^\circ$ namun dengan waktu kristalisasi lebih lama yaitu 24 jam. Intensitas puncak khas sodalit pada waktu hidrotermal 12-24 jam relatif konstan, lalu mengalami penurunan setelah 48 jam. Hal tersebut mengindikasikan bahwa sodalit mengalami transformasi fase.

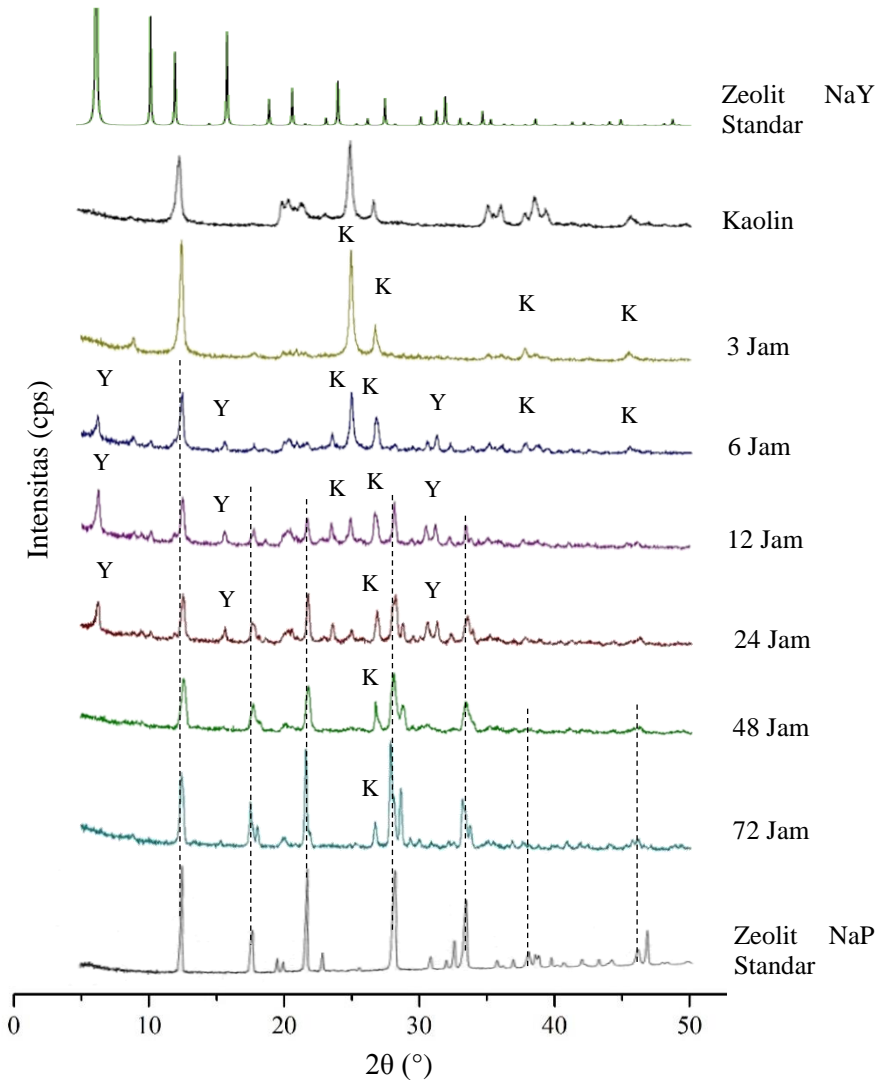


Gambar 4.4 Aluran waktu hidrotermal terhadap intensitas fase pada variasi *leaching* 4 jam

Pada variasi waktu *leaching* 4 jam, difraktogram XRD sampel hasil sintesis memiliki puncak khas zeolit NaP pada waktu hidrotermal 72 jam yaitu $2\theta = 12,6; 17,8; 21,7; 28,2; 33,4 ; 33,5;$

38,1; 46,1°. Hasil ini sesuai dengan penelitian Hilderbando dkk. (2014), dimana puncak khas zeolit NaP teridentifikasi pada $2\theta = 12,36; 17,33; 21,71; 28,03; 34,98; 46,65^\circ$. Pembentukan zeolit NaP pada variasi ini terjadi mulai waktu kristalisasi 12 jam, lebih cepat dari penelitian Hilderbando dkk., (2014) yang memerlukan waktu lebih lama yaitu 48 jam untuk membentuk zeolit NaP. Pola XRD sampel zeolit NaP pada 12 sampai 72 jam juga menunjukkan intensitas puncak khas zeolit NaP yang semakin meningkat seiring bertambahnya waktu kristalisasi. Kristal terbentuk semakin sempurna saat waktu kristalisasi 48 dan 72 jam.

Pada Gambar 4.5 terlihat pola difraktogram XRD sampel zeolit NaP dengan variasi waktu *leaching* 8 jam dan variasi waktu hidrotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam menunjukkan puncak spesifik zeolit NaP, sebagian muncul puncak lainnya seperti fase kaolinit dan fasa zeolit NaY (faujasit). Pada Gambar 4.5 menunjukkan bahwa puncak karakteristik fase kaolinit semakin kecil dengan bertambahnya waktu hidrotermal namun tetap muncul sampai waktu 72 jam. Hal ini mengindikasikan bahwa terdapat kaolin yang belum bereaksi. Fase kaolinit teridentifikasi pada $2\theta = 12,42; 24,91; 26,69; 37,80; 45,40^\circ$. Hasil tersebut sesuai dengan penelitian yang dilakukan oleh Kahraman dkk. (2005), dimana puncak khas kaolin terdapat pada $2\theta = 12,52, 25,48^\circ$ dan $38,3^\circ$. Terdapat fase lainnya yaitu fase zeolit NaY (disimbolkan dengan huruf Y) teridentifikasi pada $2\theta = 6,26; 15,51; 31,18^\circ$. Pembentukan fase zeolit NaY tersebut sesuai pada penelitian Hriljac dkk., (1993) terobservasi pada sudut refleksi $2\theta = 6,31; 10,31; 12,10; 15,92; 24,06; 27,52; 31,29^\circ$. Intensitas puncak khas zeolit NaY pada waktu hidrotermal 6-24 jam relatif konstan, setelah itu mengalami penurunan setelah 48 jam. Hal tersebut mengindikasikan bahwa mengalami transformasi fase.



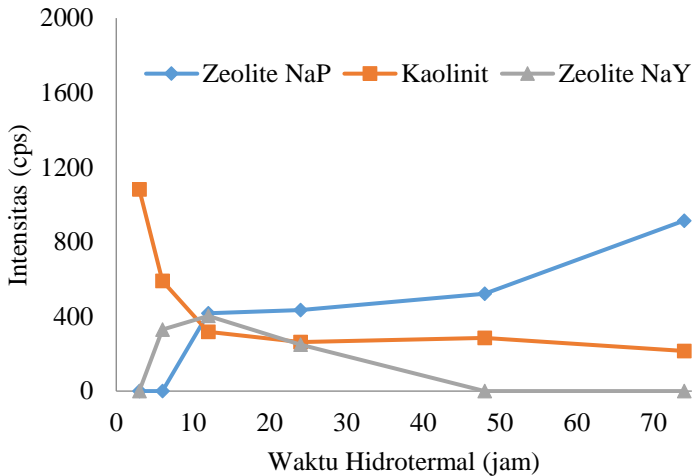
Gambar 4.5 Pola difraktogram XRD sintesis NaP dengan variasi waktu hidotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam dan waktu *leaching* 8 jam

Tabel 4.3 Puncak dengan sudut 2θ hasil sintesis dengan variasi waktu hidrotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam dan waktu *leaching* 8 jam

Sampel	2θ (°)		
	Zeolit NaP	Kaolinit	Zeolit NaY
3 Jam	-	12,42; 24,91; 26,69; 37,80; 45,40	-
6 Jam	-	12,45; 20,30; 24,91; 26,70; 35,08; 37,82; 45,44	6.20; 15.57; 31.21
12 Jam	17,72; 21,73; 28,13; 33,43	12,48; 20,04; 24,88; 26,67; 35,02; 46,13	6.26; 15.51; 31.18
24 Jam	12,59; 17,62; 21,77; 28,21; 33,54	20,61; 26,85; 37,76; 46,23	6.35; 15.67; 31.67
48 Jam	12,59; 17,73; 21,83; 28,12; 33,42	26,74; 27,86	-
72 jam	12,35; 17,53; 21,57; 28,15; 33,14	26,73	-

Difraktogram XRD sampel hasil sintesis dengan waktu *leaching* 8 memiliki puncak khas zeolit NaP pada $2\theta = 12,35; 17,53; 21,57; 28,15; 33,14^\circ$. Hasil ini sesuai dengan penelitian Hilderbando dkk. (2014), dimana puncak khas zeolit NaP teridentifikasi pada $2\theta = 12,36; 17,33; 21,71; 28,03; 34,98; 46,65^\circ$. Pembentukan zeolit NaP pada variasi ini terjadi mulai waktu kristalisasi 12 jam. Pola XRD sampel zeolit NaP pada 24-72 jam

menunjukkan intensitas puncak khas zeolit NaP yang semakin meningkat seiring bertambahnya waktu kristalisasi.



Gambar 4.6 Aluran waktu hidrotermal terhadap intensitas fase pada variasi *leaching* 8 jam

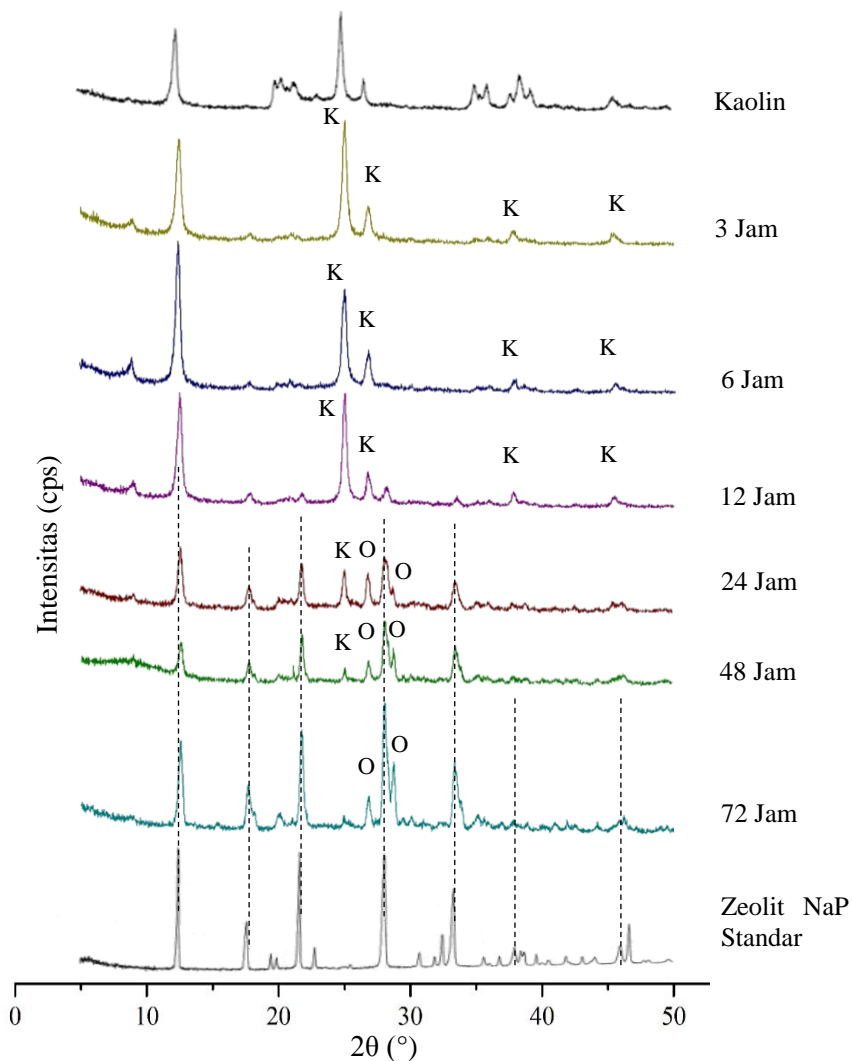
Pola difraktogram XRD sampel zeolit NaP dengan variasi waktu *leaching* 12 jam menunjukkan puncak spesifik zeolit NaP. Sebagian muncul puncak lain seperti fase kaolinit (disimbolkan dengan huruf K) dan puncak tidak teridentifikasi (disimbolkan dengan huruf O). Pada Gambar 4.5 menunjukkan bahwa puncak karakteristik kaolinit pada $2\theta = 12,53; 21,05; 25,07; 26,98; 37,83;$ dan $45,28^\circ$ yang intensitasnya semakin kecil dengan bertambahnya waktu hidrotermal. Sedangkan puncak tak teridentifikasi pada $2\theta = 26,81$ dan $28,72^\circ$ yang intensitasnya muncul pada waktu hidrotermal 24 jam dan semakin tinggi sampai 72 jam.

Difraktogram XRD sampel hasil sintesis dengan waktu *leaching* 12 jam memiliki puncak khas zeolit NaP pada $2\theta = 12,51;$

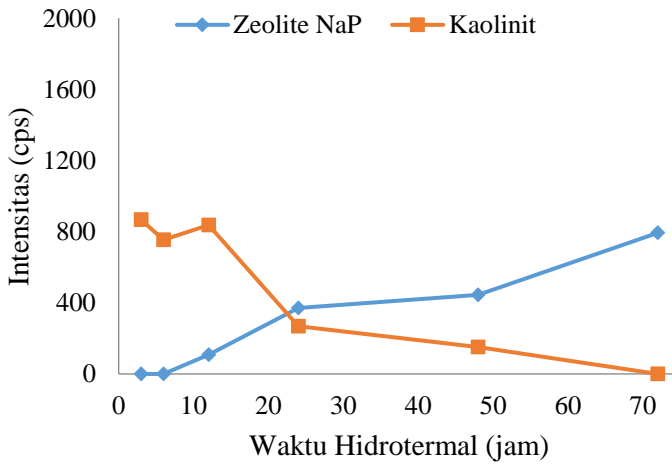
17,68; 21,75; 27,92; 33,25°. Pembentukan zeolit NaP pada variasi ini terjadi mulai waktu kristalisasi 24 jam, lebih lambat dari variasi waktu *leaching* 4 dan 8 jam. Pola XRD sampel zeolit NaP pada 24-72 jam menunjukkan intensitas puncak khas zeolit NaP yang semakin meningkat seiring bertambahnya waktu kristalisasi. Pola tersebut ditunjukkan oleh Tabel 4.4 dan Gambar 4.6.

Tabel 4.4 Puncak dengan sudut 2θ hasil sintesis dengan variasi waktu hidrotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam dan waktu *leaching* 12 jam

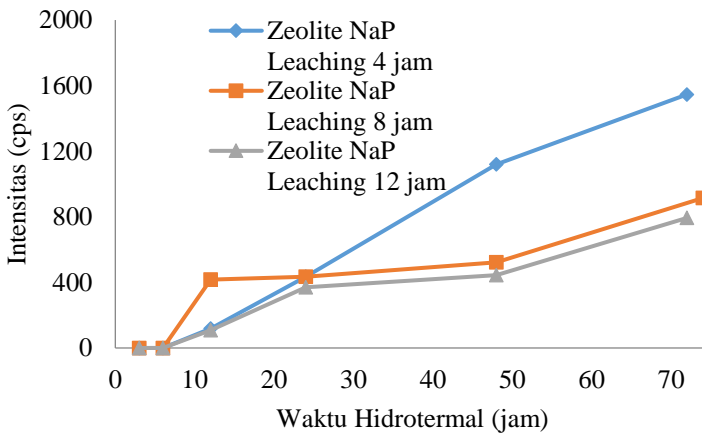
Sampel	2θ (°)	
	Zeolit NaP	Kaolinit
3 Jam	-	12,53; 21,05; 25,07; 26,98; 37,83; 45,28
6 Jam	-	12,45; 24,83; 25,05; 26,86; 37,85; 45,49
12 Jam	-	12,55; 24,94; 25,06; 26,78; 37,78; 45,61
24 Jam	12,59; 17,79; 21,84; 28,12; 33,57	25,10; 38,78; 46,33
48 Jam	12,65; 17,75; 21,83; 28,14; 33,44	25,08
72 jam	12,51; 17,68; 21,75; 27,92; 33,25	-



Gambar 4.7 Pola difraktogram XRD sintesis NaP dengan variasi waktu hidotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam dan waktu *leaching* 12 jam



Gambar 4.8 Aluran waktu hidrotermal terhadap intensitas fase pada variasi *leaching* 12 jam



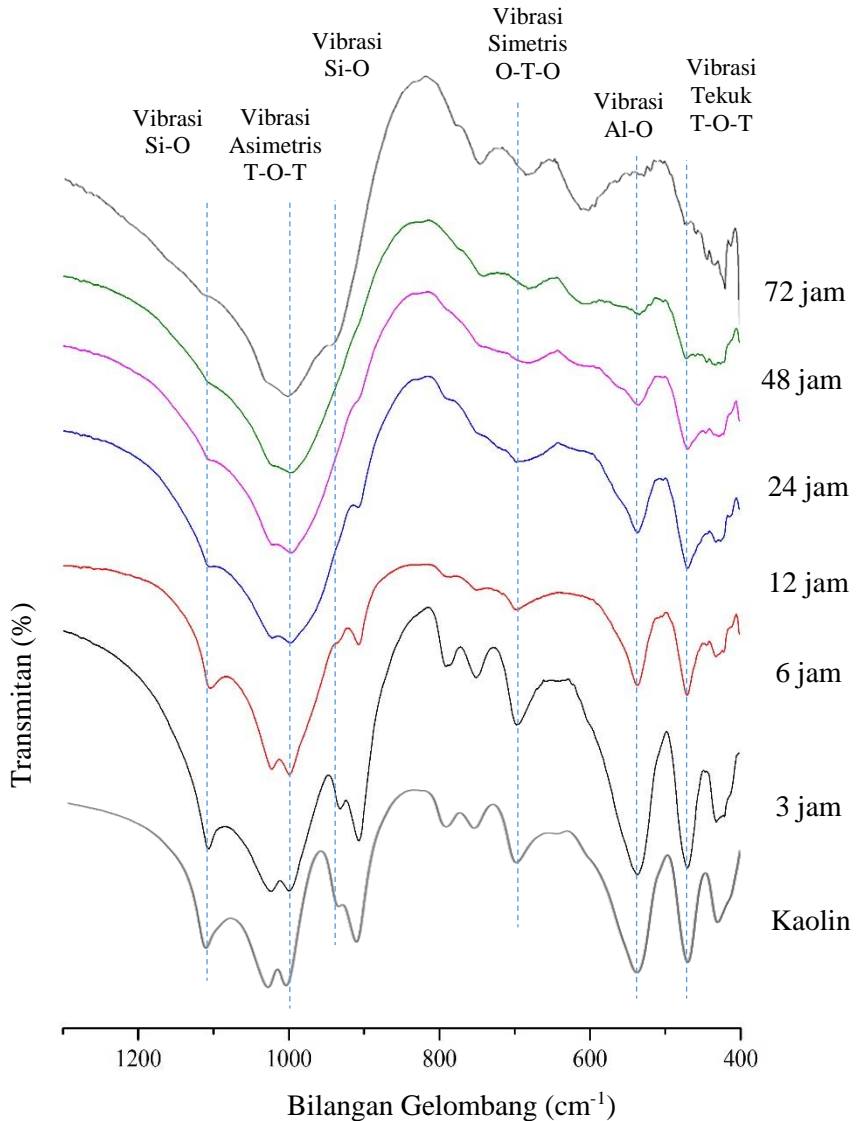
Gambar 4.9 Aluran waktu hidrotermal terhadap intensitas fase pada setiap variasi waktu *leaching*

4.3.2 Spektroskopi *Fourier Transform Infrared* (FTIR)

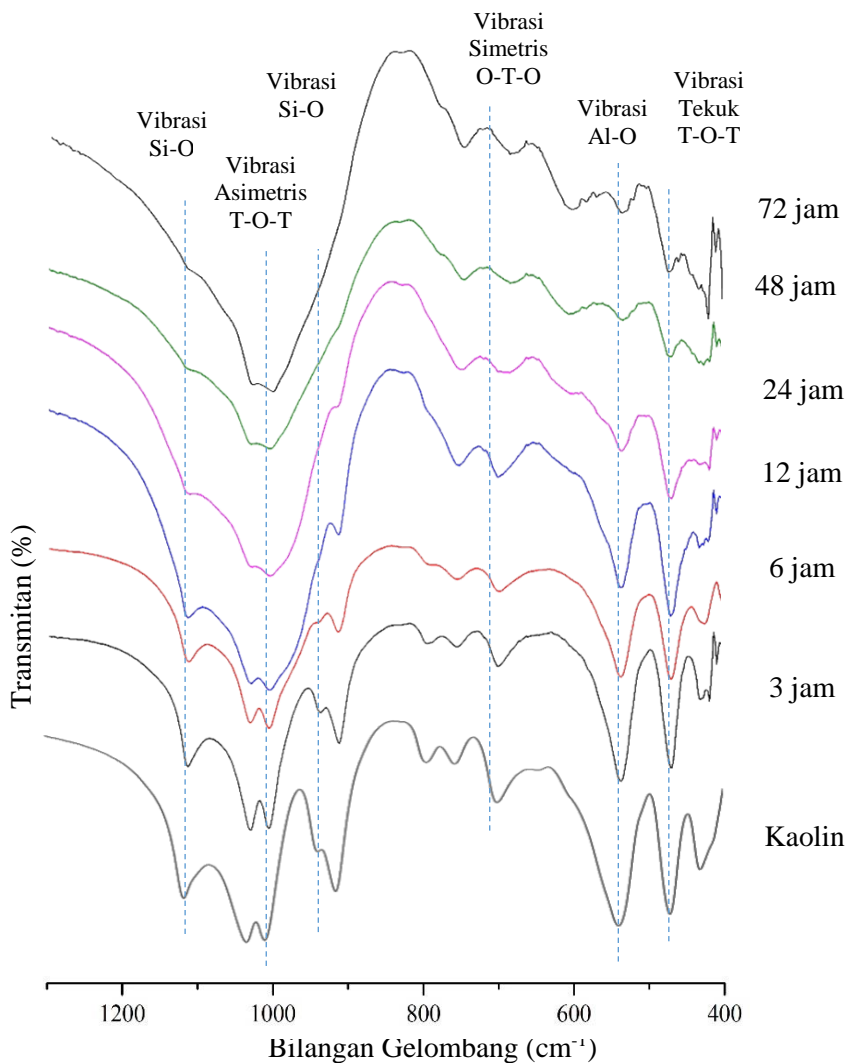
Hasil karakterisasi padatan dengan spektroskopi inframerah (FTIR) digunakan untuk mengetahui vibrasi gugus fungsi pada sampel hasil sintesis. Spektra inframerah kaolin dan keenam sampel zeolit NaP dengan variasi waktu *leaching* 4, 8, dan 12 jam dengan variasi waktu hidrotermal 3, 6, 12, 24, 48, dan 72 jam ditunjukkan pada Gambar 4.10, Gambar 4.11, dan Gambar 4.12. Pada spektra, kaolin teridentifikasi puncak karakteristik pada bilangan gelombang 430, 468, 538, 698, 756, 792, 912, 1031, dan 1114 cm^{-1} . Menurut chandrasekar (1996) puncak khas kaolin muncul pada bilangan gelombang 541 cm^{-1} yang merupakan vibrasi Al-O pada $\text{Al}[\text{O}(\text{OH})]_6$, sedangkan pada 430, 693, 752, 794, 1035, 1096 dan 1114 cm^{-1} merupakan vibrasi Si-O pada SiO_4 .

Spektra inframerah sampel hasil sintesis pada Gambar 4.10, Gambar 4.11, dan Gambar 4.12 juga menunjukkan puncak serapan spesifik zeolit NaP pada daerah sekitar 430-470, 605-744, dan 1001-1006 cm^{-1} . Puncak serapan pada bilangan gelombang 430-470 menunjukkan vibrasi tekuk gugus TO_4 , dimana T = Si, Al (Liu dkk., 2003). Sedangkan vibrasi ikatan dari Si-O dan Al-O ditunjukkan pada gelombang bilangan pada daerah 605-744 cm^{-1} . Adanya serapan pada 1001-1006 cm^{-1} menunjukkan vibrasi ulur internal asimetris tetrahedron TO_4 (Bohra dkk., 2014).

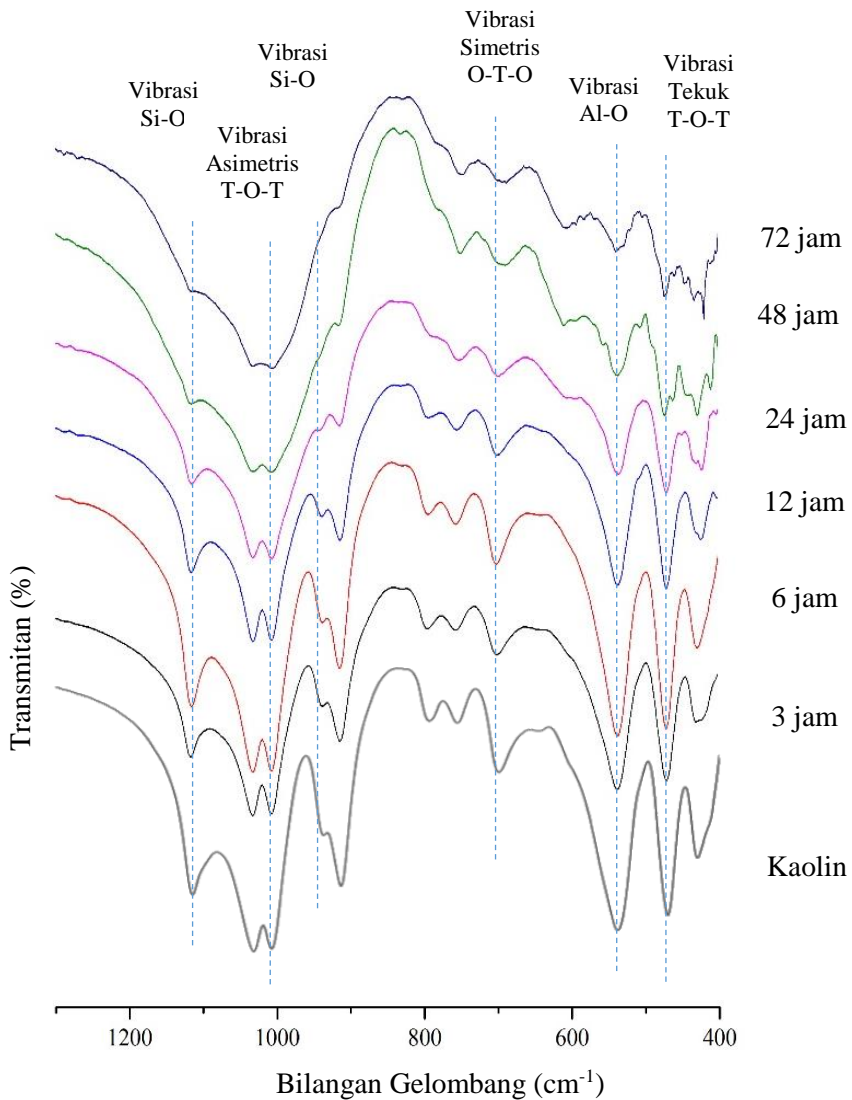
Pada Gambar 4.10 menunjukkan spektra sampel variasi 3 sampai 12 jam masih terdapat puncak yang sejajar dengan puncak khas kaolin pada bilangan gelombang sekitar 536, 912 dan 1114 cm^{-1} . Pada variasi 24 dan 48 jam hanya terdapat puncak sekitar 536 cm^{-1} . Hal ini mengindikasikan bahwa pada sampel variasi 3 sampai 48 jam masih terdapat kaolin yang belum larut. Informasi tersebut sesuai dengan data XRD yang menunjukkan adanya puncak khas kaolin. Spektra sampel variasi 72 jam tidak menunjukkan adanya puncak yang sejajar dengan puncak kaolin.



Gambar 4.10 Spektra inframerah kaolin dan hasil sintesis dengan variasi hidrotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam dengan waktu *leaching* 4 jam



Gambar 4.11 Spektra inframerah kaolin dan hasil sintesis dengan variasi hidrotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam dengan waktu *leaching* 8 jam



Gambar 4.12 Spektra inframerah kaolin dan hasil sintesis dengan variasi hidrotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam dengan waktu *leaching* 12 jam

Tabel 4.5 Bilangan gelombang puncak serapan spektra inframerah dengan variasi waktu hidrotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam dan waktu *leaching* 4 jam

Waktu Jenis vibrasi	Bilangan gelombang (cm^{-1})					
	3 Jam	6 Jam	12 Jam	24 jam	48 jam	72 jam
Vibrasi tekuk T-O	-	470	468	468	470	470
Vibrasi simetris O-T-O	-	700	700	684	611 684 744	606 684 744
Vibrasi Asimetris T-O-T	1006	1006	1004	1004	1003	1001
Vibrasi Si-O	760 792 912 1031 1114	912 1030 1112	1030 1114	-	-	-
Vibrasi Al-O	536	536	536	536	534	-

Hasil analisis spektra dapat diketahui bahwa kaolin telah mengalami transformasi secara sempurna pada waktu hidrotermal 72 jam menjadi zeolit NaP dengan bilangan gelombang 470, 606, 684, 744, dan 1001 cm^{-1} sesuai dengan penelitian Liu dkk. (2003) yang terdapat puncak serapan spesifik zeolit NaP pada daerah sekitar 430-470, 605-744, dan $1001\text{-}1006 \text{ cm}^{-1}$.

Tabel 4.6 Bilangan gelombang puncak serapan spektra inframerah dengan variasi waktu hidrotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam dan waktu *leaching* 8 jam

Waktu Jenis vibrasi	Bilangan gelombang (cm^{-1})					
	3 Jam	6 Jam	12 Jam	24 jam	48 jam	72 jam
Vibrasi tekuk T-O	471	468	470	471	470	470
Vibrasi simetris O-T-O	700	700	700	698	603 694	603 690
Vibrasi Asimetris T-O-T	1004	1004	1006	1004	1004	1004
Vibrasi Si-O	440 760 792 912 1030 1114	430 760 912 937 1031 1114	430 760 916 1113	760 912	750 914	755
Vibrasi Al-O	536	536	536	536	536	536

Pada Gambar 4.11 dan Gambar 4.12 menunjukkan spektra sampel *leaching* 8 dan 12 jam tersebut masih terdapat puncak yang sejajar dengan puncak khas kaolin pada bilangan gelombang sekitar 536, 912, dan 1114 cm^{-1} . Hal ini mengindikasikan bahwa pada semua sampel masih terdapat kaolin yang belum larut. Informasi tersebut sesuai dengan data XRD yang menunjukkan adanya puncak khas kaolin. Pada waktu hidrotermal 72 juga masih terdapat puncak selain zeolit NaP yaitu kaolin.

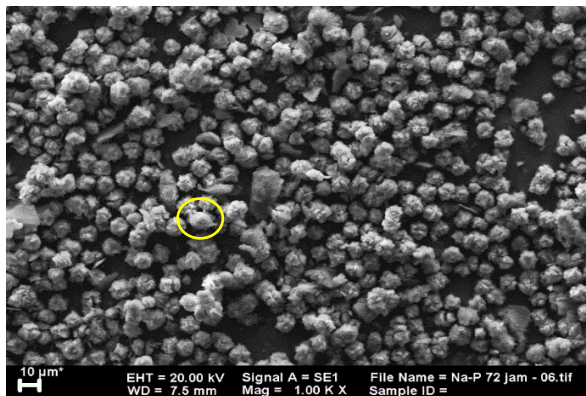
Tabel 4.7 Bilangan gelombang puncak serapan spektra inframerah dengan variasi waktu hidrotermal 3, 6, 12, 24, 48 dan 72 jam dan waktu *leaching* 12 jam

Waktu Jenis variasi	Bilangan gelombang (cm ⁻¹)					
	3 Jam	6 Jam	12 Jam	24 jam	48 jam	72 jam
Vibrasi tekuk T-O	471	470	468	470	470	471
Vibrasi simetris O-T-O	700	700	700	700	610 698	610 698
Vibrasi Asimetris T-O-T	1006	1004	1006	1004	1006	1006
Vibrasi Si-O	430 760 792 912 1031 1114	430 760 792 912 1031 1114	425 760 912 1031 1114	754 794 1031 1114	752 794	752 914
Vibrasi Al-O	536	536	536	536	536	536

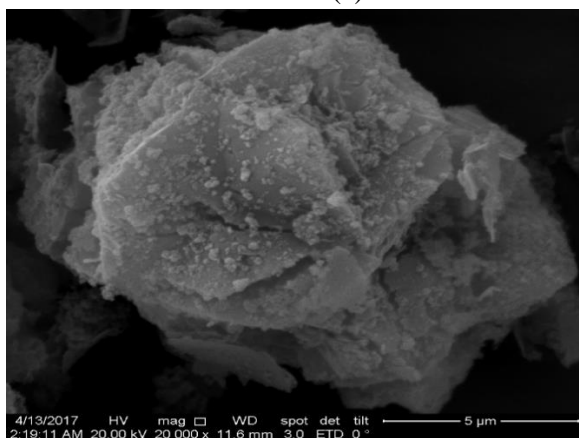
4.3.3 Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersive X-ray (SEM-EDX)

Pengamatan dengan *Scanning Electron Microscopy* (SEM) bertujuan untuk mengetahui morfologi dan ukuran partikel sampel, sedangkan *Electron Dispersive X-ray* (EDX) untuk mengetahui unsur-unsur yang terdapat dalam sampel. Hasil

karakterisasi XRD dan FTIR sampel dengan variasi *leaching* 4 jam dengan waktu hidrotermal 72 jam menunjukkan pola difraktogram dan pola spektra inframerah yang seragam dengan NaP. Oleh karena itu, karakterisasi SEM-EDX dilakukan pada sampel zeolit NaP dengan waktu *leaching* 4 jam dengan waktu hidrotermal 72 jam.



(a)



(b)

Gambar 4.13 Mikrograf SEM zeolit NaP dengan (a) perbesaran 10.000, dan (b) perbesaran 20.000

Pada Gambar 4.13 hasil sintesis zeolit NaP dengan waktu *leaching* 4 jam dan waktu hidrotermal 72 jam memiliki morfologi yang seragam. Zeolit NaP hasil sintesis memiliki bentuk partikel tidak spesifik (seperti bola pecah) dengan ukuran agregat partikel 150-300 nm (lingkaran kuning). Bentuk tersebut sama seperti pada hasil penelitian Behin (2015) dimana zeolit P yang disintesis dari kaolin memiliki morfologi seperti bola pecah. Hal tersebut memperkuat informasi yang ditunjukkan oleh data XRD dimana terdapat puncak khas zeolit P pada $2\theta = 12,6; 17,8; 21,7; 28,2; 33,4; 33,5; 38,1; 46,1^\circ$ dan puncak serapan IR 430-470, 605-744, dan $1001-1006\text{ cm}^{-1}$.

Analisis EDX digunakan untuk mengetahui komposisi unsur yang terdapat pada sampel zeolit NaP waktu *leaching* 4 jam dengan waktu hidrotermal 72 jam. Hasil karakterisasi EDX sampel tersebut ditampilkan pada Tabel 4.8. Dari hasil EDX diketahui bahwa dua sampel zeolit NaP yang dianalisis mengandung unsur-unsur yang digunakan sebagai prekursor yaitu Si, Al, Na dan O. Dari hasil perhitungan dengan data presentase atom Si dan Al diperoleh rasio mol Si/Al sebesar 1,46 untuk sampel variasi *leaching* 4 jam dengan waktu hidrotermal 72 jam.

Distribusi komposisi unsur hasil sintesis dapat diketahui dari hasil pemetaan (*mapping*) pada SEM-EDX. Tabel 4.8 menunjukkan distribusi hasil sintesis zeolit NaP variasi *leaching* 4 jam dengan waktu hidrotermal 72 jam yang menunjukkan bahwa unsur Si dan Al terdistribusi pada sampel hasil sintesis. Sampel zeolit NaP memiliki distribusi Si dan Al yang merata.

Tabel 4.8 Hasil analisis EDX sampel zeolit NaP

Sampel	% Atom				Rasio mol SiO ₂ /Al ₂ O ₃
	Si	Al	Na	O	
72 Jam	19,03	13,89	11,91	55,17	1,46

BAB V

KESIMPULAN

5.1 Kesimpulan

Sintesis zeolit NaP dilakukan dari kaolin yang telah *dileaching* dengan variasi waktu *leaching* kaolin. Berdasarkan hasil karakterisasi dengan *X-Ray Fluoruscense* (XRF), menunjukkan bahwa rasio Si/Al mengalami peningkatan dengan meningkatnya waktu *leaching* kaolin dengan asam sulfat 4 M. Rasio Si/Al pada waktu *leaching* 4, 8, dan 12 jam mengalami peningkatan dari 1,53 menjadi 2,82; 3,18; dan 3,68. Hasil karakterisasi dengan *X-Ray Diffraction* (XRD) dan *Fourier Transform Infrared* (FTIR), menunjukan kristal zeolit NaP dengan *leaching* selama 4 jam mulai terbentuk pada waktu hidrotermal 12 jam. Intensitas kristal terus meningkat hingga waktu hidrotermal 72 jam dan terbentuk zeolit NaP. Semakin meningkatnya rasio Si/Al mengakibatkan semakin lama waktu hidrotermal dalam pembentukan kristalin zeolit NaP. Hasil data SEM didapatkan morfologi dan ukuran agregat partikel sampel zeolit NaP pada kaolin *leaching* 4 jam dan hidrotermal 72 jam memiliki bentuk partikel yang tidak spesifik seperti bola pecah dengan ukuran agregat partikel 150-300 nm. Hasil analisis EDX menunjukkan bahwa zeolit NaP hasil sintesis memiliki rasio $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ sebesar 1,46.

5.2 Saran

Pada penelitian selanjutnya yang berkaitan tentang sintesis zeolit NaP dari kaolin yang telah *dileaching* dengan variasi waktu *leaching* disarankan untuk melakukan variasi waktu hidrotermal lebih lama agar pengaruh terhadap waktu *leaching* dapat diketahui secara lebih detail. Perlu dilakukan studi lebih lanjut juga mengenai

faktor lain yang dapat meningkatkan intensitas fase zeolit NaP yang disintesis secara proses *leaching*.

DAFTAR PUSTAKA

- Adamczyk, Z., and Bialecka, B. (2005). "Hydrothermal synthesis of zeolites from polish coal fly ash". *Polymer Journal Enviroment Study*, 713-719.
- Akolekar, D., Chaffee, A., and Howe, R. (1997). "The Transformations of Kaolin to Low-Silica X Zeolite". *Zeolite*, 359-365.
- Albert, B. R., Cheetham, A.K., Stuart, J.A., and Adams, C.J. (1998). "Investigations of P zeolites: synthesis, characterisation, and structure of highly crystalline low-silica NaP". *Microporous Mesoporous Matery*, 21:133–142.
- Aldahri, T., Behin, T., Kazemin, H., and Rohani, S. (2016). "Synthesis of Zeolite NaP from coal fly ash by thermos-sonochemical treatment". *Fuel*, 12:44-501.
- Ambikadevi, V.R., and Lalithambika, M. (2000). "Effect of organic acids on ferric iron removal from iron-stained kaolinite". *Applied Clay Science*, 16:133–145.
- Atkins, M., Glasser, F. P., and Jack, J. J. (1995). "Zeolite P in cements: its potential for immobilizing toxic and radioactive waste species". *Waste Manage.* 15:127–135.
- Baerlocher, C. (2001). *Atlas of Zeolite Framework of Types Fifth revised edition*. USA.
- Barrer, R.M. (1982). *Hydrothermal Chemistry of Zeolites*. London: Academic Press.
- Basaldella, E. I., Kikot, A., and Pereira, E. (1990). "Synthesis zeolites from mechanically activated kaolin clays". *Reactivity of Solids*, 8:169-177.

- Behin, J., Kazemian, H., and Rohani, S. (2016). "Sonochemical synthesis of zeolite NaP from clinoptilolite". *Ultrasonics Sonochemistry*, 28: 400–408.
- Belver, C.M.A. and Vicente, C.M.A. (2002). "Preparation of Porous Silika by Acis Activation of Metakaolins". *Studies in Surface Science and Catalysis*, 144:307-314.
- Belver, C.M.A., Munoz, B., and Vicente, M.A. (2002). "Chemical activation of a kaolinite under acid and alkaline conditions". *Chemistry Matery*. 14:2033-2043.
- Belviso, C., Cavalcante, F., Lettino, A., and Fiore, S. (2013). "A and X-type zeolites synthesised from kaolinite at low temperature". *Applied Clay Science*, 162-168.
- Bohra, S., Kundu, D., and Naskar, M.K. (2013). "One-pot synthesis of NaA and NaP zeolite powders using agro-waste material and other low cost organic-free precursors". *Ceramics International*, 40:122-1234.
- Breck, D. W. (1984). *Zeolite Molecular Sieves: Structure, Chemistry, and Use*. New York: John Wiley & Sons Inc.
- Budhikarjono, K. (1996). *Diktat Kuliah Alat Industri Kimia edisi pertama*. 99-101, Institut Sepuluh Nopember, Surabaya.
- Calderon, G.D.T., Rodriguez, J.I., Ortiz-Mendez, U., Torres Martinez, L.M. (2005). "Iron leaching of a Mexican clay of industrial interest by oxalic acid". *Journal Material Online*, 1:1–8.
- Cameselle, C., Nunez, M.J., Lema, J.M. (1997). "Leaching of kaolin iron-oxides with organic acids". *Journal Chemistry Technology Biotechnology*, 70:349–354.
- Cheetam, D.A. (1992). *Solid State Compound*. USA: Oxford university press, 234-237.

- Cheng, H., Liu, Q., Yang, J., Ma, S., and Frost, R. L. (2012). "The thermal behavior of kaolinite intercalation complexes-a review". *Thermochim*, 545:1-13.
- Cullity, B. D. (1956). *Elements of X-Ray Diffraction*. Massachusetts: Addison-Wesley Publishing Company.
- Flanigen, E.M., Robert, W.B., and Stephen, T.W. (2010). "Zeolite in industrial separation and catalyst", In: Kulprathipanja, S. (Ed.), Introduction. Wiley-VCH Verlag GmbH and Co. K Ga A, 1-26.
- Geankoplis, C.J. (2003). *Transport Processes and Separation Process Principles (includes Unit Operations) fourth edition*. pp 776-777, 802-806, Prentice Hall, New Jersey.
- Gedde, U. (1995). *Polymer Physics*. London: Chapman & Hall.
- Gougazeh, M. and Buhl, J.C. (2013). "Synthesis and characterization of zeolite A by hydrothermal transformation of natural Jordanian kaolin", *Journal of the Association of Arab Universities for Basic and Applied Sciences*, page 35-42.
- Grim, R. E. (1968). *Clay mineralogy second edition*. New York: McGraw-Hill.
- Hay, R. L. (1966). *Zeolites and zeolitic reactions in sedimentary rocks*. California: Dept. Geology and Geophysics, University of California.
- Hansen, S., Angel, R., Canovas, R., Filth, L. (1993). "On the crystal chemistry of NaP zeolites". *Zeolites*, 13:276-280.
- Harahsheh, M.A. (2005). "The Influence of Microwaves On the Leaching Kinetics of Chalcopyrites". *Journal of Mineral Engineering*. 18:1259-1268.
- Huang, Y., Dong, D., and Yao, J. (2010). "In situ crystallization of microporous monoliths with hollow NaP zeolite structure". *Chemistry Material*, 22:5271-5278.

- Hildebrando, E. A., Gianesi, C., Augusto, C., Simões, R., Rolando, F., and Roberto. (2013). "Synthesis and Characterization of Zeolite NaP Using Kaolin Waste as a Source of Silicon and Aluminum". *Materials Research*.
- Hriljac, J.J., Eddy, M.M., Chetham, A.K., Donohue and G. J. Ray. (1993). *Journal Solid State Chemistry*. 106:66–72.
- Jha, B. and Singh, D. N. (2014). "A three step process for purification of fly ash zeolites by hydrothermal treatment", *Applied Clay Science*, 122-129.
- Kakansson, L., Falth, S., and Hansen. (1990). "Structure of a high silica variety of zeolite NaP". *Acta Crystal*, C46, 1363.
- Kartimi, R., Bayati, B., Aghdam, N.C., Ejtemaee, M., and Babaluo, A.A. (2012). "Studies of the Effect of Synthesis Parameters on ZSM-5 Nanocrystalline Material During Template-hydrothermal Synthesis in the Presence of Chelating Agent". *Powder Technology*, 229:229-236.
- Kazemian, H., Naghdali, Z., Kashani, T.G., and Farhadi, F. (2010). "Conversion of high silicon fly ash to NaP1 zeolite: alkaline fusion followed by hydrothermal crystallization". *Adv Powder Technology*, 21: 279-283.
- Lee, S.O., Tran, T., Park, Y.Y., Kim, S.J., ve Kim, M.J. (2006). "Study on the kinetics of iron oxide leaching by oxalic acid". *International Journal Mineralogy Process*, 80:144–152.
- Lobachev, A.N. (1973). *Crystallization Processes Under Hydrothermal Conditions*. New York: Consultants Bureau.
- Mackinnon, I. D., Millar, G. J., and Stolz, W. (2010). "Low temperature synthesis of zeolite N from kaolinites and montmorillonites", *Applied Clay Science*, page 622-630.

- Molina, A., and Poole, C. (2004). "A comparative study using two methods to produce zeolites from fly ash", *Mineralogy Engineering*, page 167-173.
- Morey, G. W., and Niggli, P. (1913). "The Hydrothermal Formation of Silicates", A Review, *Journal American Chemistry Society*, 35:1086–1130.
- Murray, H.H. (2000). "Traditional and New application for Kaolin, smectite, and Palygorskite: a general Overview", *Applied Clay Science*, 17:207-221.
- Musyoka, N. M., Petrik, L., Fatoba, O. O., and Hums, E. (2013). "Synthesis of zeolites from coal fly ash using mine water", *Mineralogy Engineering*, page 9-15.
- Murayama, N., Yamamoto, H., and Shibata, J. (2002). "Mechanism of zeolite synthesis from coal fly ash by alkali hydrothermal reaction" *International Journal Mineralogy Process*, 64: 1-17.
- Nery, J.G., Mascarenhas, Y.P., and Cheetham, A.K. (2013). "A study of the highly crystalline, low-silica, fully hydrated zeolite P ion exchanged with (Mn^{2+} , Cd^{2+} , Pb^{2+} , Sr^{2+} , Ba^{2+}) cations". *Micropory Mesopory Matererial*, 57:229-248.
- Querol, X., Plana, F., Alastuey, A., and Lopez-Soler, A. (1997). "Synthesis of Na-zeolites from fly ash", *Fuel*, page 793-799.
- Pagnanelli, F., Garavini, M., Veglio, F., and Toro, L. (2004). "Preliminary Screening of Purification Processes of Liquor Leach Solutions Obtained from Reductive Leaching of Low Grade Manganes Ore". *Journal of Hydrometallurgy*, 71:319-327.
- Panda, A.K., Mishraa, B.G., Mishrac, D.K., and Singh, R.K. (2010). "Effect of sulphuric acid treatment on the physico-chemical characteristics of kaolin clay". *Colloids and*

- Surfaces A: Physicochemistry Engineering Aspects*, 363:98-104.
- Parker, S.P. (1988). *McGraw-Hill encyclopedia of the geological sciences*, 2nd ed. New York, McGraw-Hill, pp 32–33, 69–72, 400–401.
- Prasad, M. S., Reid, K. J., and Murray, H. H. (1991). "Kaolin: processing, properties and applications", *Applied Clay Science*, page 87-119.
- Prasetyoko, D., Fanzuri, H., Y.L., N., and Fadlan, A. (2016). *Karakterisasi Padatan Difraksi Sinar X, Spektroskopi SEM, Analisis Termal, Struktur Pori Edisi pertama*. Yogyakarta.
- Puppe, W. (1999). *Catalysis and Zeolit*. Springer, Berlin.
- Querol, X., Plana, F., Alastuey, A., and Lopez-Soler, A. (1997). "Synthesis of Na-zeolites from fly ash", *Fuel*, page 793-799.
- Rashad, A.M. (2013). "Metakaolin as Cementitious Material: History, Scours, Production and Composition A Comprehensive Overview". *Construction and Building Materials*, 41, 303-318.
- Rees, D., Cronje, R., and du Toir, RSJ. (1992). "Dust exposure and pneumoconiosis in a South African pottery.1. Study objectives and dust exposure". *Br J Ind Med*, 49: 459-464.
- Rhodes C.N., Franks, M., Parkes, G.M.B., and Brown, D.R. (1991). "The effect of acid treatment on the activity of clay supports for ZnCl₂ alkylation catalysts", *Journal Chemistry Society Chemistry Community*, 12:804–807.
- Rodrigues M.G.F. (2003). "Physical and catalytic characterization of smectites from Boa-Vista, Paraiba, Brazil" *Ceramica*, 49:146–150.

- Rustam. (2013). "Direct Synthesis of ZSM-5 from Kaolin the Presence of TPABr and TPAOH as Organic Templates", Thesis Kimia ITS, Surabaya.
- Saija, L., Ottana, R., and Zipelli, C. (1983). "Zeolitization of pumice in ash-sodium salt solutions", *Material Chemistry Physisc*, page 207-216.
- Saikia, N.J., Bharali, D.J., Sengupta, P., Bordoloi, D., Goswamee, R.L., Saikia, P.C., and Borthakur, P.C. (2003). "Characterization, beneficiation and utilization of a kaolinite clay from Assam, India". *Applied Clay Science*, 24:93–103
- Sathupunya, M., Gulari, E., and Wongkasemjit, S. (2002). "ANA and GIS zeolite synthesis directly from alumatrane and silatrane by sol-gel process and microwave technique". *Journal Europe Ceramics Society*, 22: 2305–2314.
- Sepulveda, M.J., Vallyathan, V., Attfield M.D., Piacitelli, L., and Tucker, J.H. (1983). "Pneumoconiosis and lung function in a group of kaolin workers". *Am Rev Respir Dis*, 127: 231–235.
- Sibilia, P. (1996). *Guide to Material characterization and chemical analysis second edition*. John Willey-VCH, New York.
- Skoog, D., Holler, F., and Nieman, T. (1998). "*Principles of Instrumental Analysis (2nd ed.)*", Saunders College Publishing, Philadelphia.
- Smart, L., dan Moore, E. (1993). *Solid State Chemistry First edition*. Chapman and Hall University and Proffesional Division, London.
- Smith K. C. A. and Oatley C. W. (1955). "The Scanning Electron Microscope and Its Fields of Application". *British Journal of Applied Physics*, 6:391.

- Szoztak, R. (1998). *Molecular Sieves: Principles of Synthesis and Identification 2nd edition*. London: Blackie Academic and Professional.
- Tanaka, H., Miyagawa, A., Eguchi, H., and Hino, R. (2004). "Synthesis of a pure-form Zeolite A from coal fly ash by dialysis". *Industry Engineering Chemistry Resume*, page 6090-6094
- Tanaka, H., Fujii, A., Fujimoto, S., and Tanaka, Y. (2008). "Microwave-assisted two-step process for the synthesis of a single-phase NaA zeolite from coal fly ash", *Adv. Powder Technology*, page 83-94.
- Thoriils, C.L., Hickey, J., and Stecke, G. (1950). "Chemistry of clay racking catalysts", *Journal Industry Engineering Chemistry*, 42:866–871.
- Tuncuk, A., Ciftlik, S., and Akcil, A. (2013). "Factorial experiments for iron removal from kaolin by using single and two-step *leaching* with sulfuric acid", *Hydrometallurgy*, 134-135: 80–86.
- Veglio, F., Toro, L. (1994). "Process development of kaolin bleaching using carbohydrates in acid media". *International Journal Mineralogy Process*, 41:239–255.
- Veglio, F., Pagliarini, A., Toro, L. (1993). "Factorial experiments for the development of a kaolin bleaching process". *International Journal Mineralogy Process*, 39: 87–99.
- Veglio, F., Passariello, B., Toro, L., Marabini, A.M. (1996). "Development of a bleaching process for a kaolin of industrial interest by oxalic, ascorbic, and sulfuric acids: preliminary study using statistical methods of experimental design". *Industry Engineering Chemistry Res.*, 35:1680–1687.

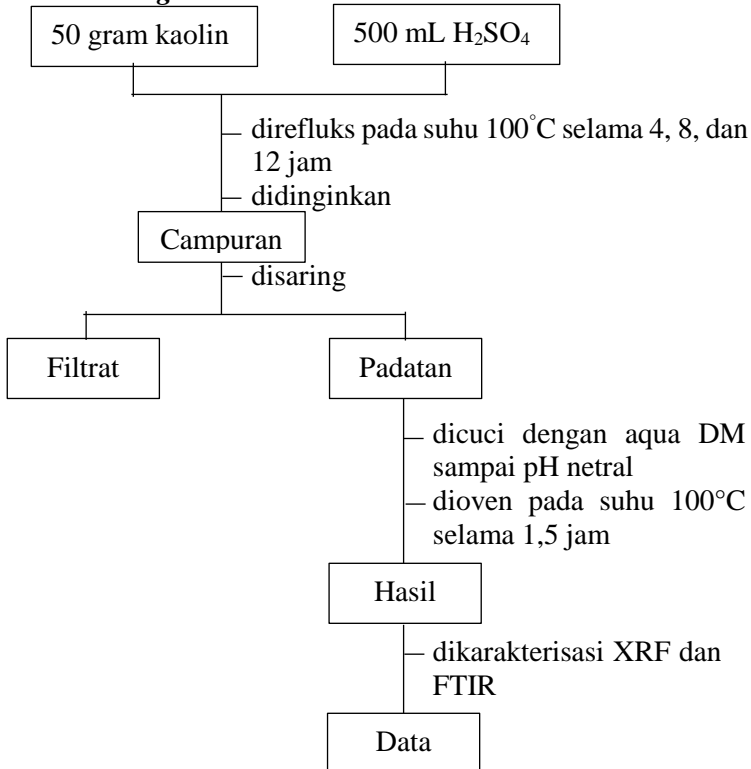
- Veglio, F., Passariello, B., Barbaro, M., Plescia, P., Marabini, A.M. (1998). "Drum leaching tests in iron removal from quartz using oxalic and sulphuric acids". *International Journal Mineralogy Process*, 54:183–200.
- Walek, T. T., Saito, F., and Zhang, Q. (2008). "The effect of low solid/liquid ratio on hydrothermal synthesis of zeolites from fly ash", *Fuel*, page 3194-3199.
- Wang, B., and Ma, H. Z. (1998). "*Microporous Mesoporous Mater*", page 131.
- Wang, P., Shen, B., Shen, D., Peng, T., and Gao, J. (2007). "Synthesis of ZSM-5 Zeolite from Expanded Perlite/Kaolin and Its Catalytic Performance for FCC Naphtha Aromatization", *Catalysis Communications*, 8, 1452–1456.
- Wang, C. F., Li, J. S., Wang, L. J., and Sun, X. Y. (2008). "Influence of NaOH concentrations on synthesis of pure-form zeolite A from fly ash using two-stage method", *Journal Hazard. Material*, page 58-64.
- West A.R. 1984. *Solid state chemistry and its applications*. John Wiley & Sons, New York.
- Xu, R., Pang, W., Yu, J., Qisheng, H., and Chen, J. (2007). *Chemistry of Zeolites and Related Porous Materials: Synthesis and Structure*. Singapore, Asia: John Wiley and Sons.
- Zubowa, H.L., Kosslick H., and Mueller, D. (2008). "Crystallization of phasepure zeolite NaP from MCM-22-type gel compositions under microwave radiation". *Micropory Mesopory Material*, 109: 542–548.

“Halaman ini sengaja dikosongkan”

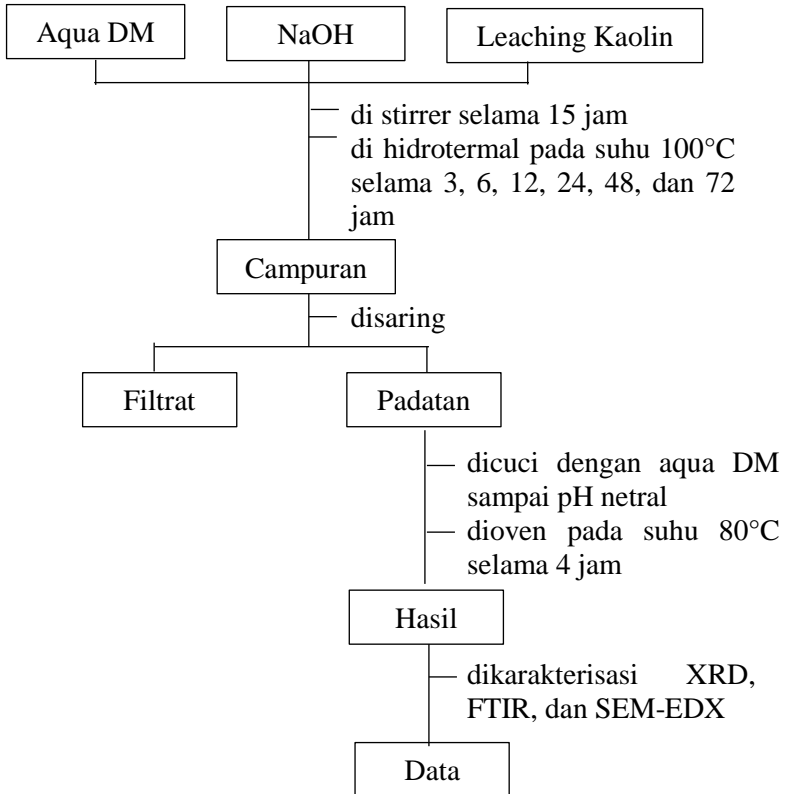
LAMPIRAN

A. Prosedur Sintesis Zeolit NaP

A1. *Leaching*



A2. Sintesis Zeolit NaP



B. Perhitungan Sintesis Zeolit NaP

B1. Persentase Komposisi Bahan

- a) Kaolin (setelah *leaching*)
 - $\text{Al}_2\text{O}_3 = 23,3 \%$ ($M_r = 101,96 \text{ g/mol}$)
 - $\text{SiO}_2 = 65,7 \%$ ($M_r = 60,09 \text{ g/mol}$)
- b) Aqua DM ($M_r = 18 \text{ g/mol}$)
- c) NaOH pellet = 99 % ($M_r = 40 \text{ g/mol}$)
- d) $\text{H}_2\text{SO}_4 = 98\%$ ($M_r = 98,08 \text{ g/mol}$)

B2. Proses *Leaching* Asam Sulfat

Molaritas asam sulfat:

$$M = \frac{\rho \cdot \%}{m_r} = \frac{1,84 \cdot 10^3 \frac{\text{g}}{\text{dm}^3} \cdot 98\%}{98,08 \frac{\text{g}}{\text{mol}}} = 18,38 \frac{\text{mol}}{\text{dm}^3} = 18,38 \text{ M}$$

Pengenceran asam sulfat 4 M:

$$\begin{aligned} M_1 \times V_1 &= M_2 \times V_2 \\ 4 \text{ M} \times 100 \text{ mL} &= 18,38 \text{ M} \times V_2 \\ V_2 &= 21,7627 \text{ mL} \end{aligned}$$

B3. Sintesis Zeolit NaP

Komposisi molar bahan untuk pembuatan sintesis zeolit NaP

$\text{Na}_2\text{O} : \text{Al}_2\text{O}_3 : \text{SiO}_2 : \text{H}_2\text{O} = 2,1 : 1 : 3,8 : 50$

- a) 1 mol Al_2O_3

$$\begin{aligned} \text{Massa NaAlO}_2 &\quad \text{yang dibutuhkan} \\ \text{Massa Al}_2\text{O}_3 &= n \times M_r \\ &= 1 \text{ mol} \times 101,96 \text{ g/mol} \\ &= 101,96 \text{ g} \end{aligned}$$

Persentase Al_2O_3 dalam kaolin adalah 23,3%, maka massa kaolin yang harus diambil adalah:

$$\text{Massa kaolin} = \frac{\text{massa Al}_2\text{O}_3}{0,233}$$

$$\begin{aligned}
 & 23,3 \% \\
 & = \frac{101,96 \text{ g}}{23,3 \%} \\
 & = 437,596 \text{ gram}
 \end{aligned}$$

b) 3,8 mol SiO_2

Massa kaolin yang diperlukan

$$\begin{aligned}
 \text{Massa SiO}_2 &= n \times \text{Mr} \\
 &= 3,8 \text{ mol} \times 60,09 \text{ g/mol} \\
 &= 228,342 \text{ gram}
 \end{aligned}$$

Persentase SiO_2 dalam kaolin adalah 65,7%, maka massa kaolin yang harus diambil adalah

$$\begin{aligned}
 \text{Massa kaolin} &= \frac{\text{massa SiO}_2}{65,7\%} \\
 &= \frac{228,342 \text{ g}}{65,7 \%} \\
 &= 347,55 \text{ gram}
 \end{aligned}$$

c) 50 mol H_2O

Massa H_2O yang diperlukan

$$\begin{aligned}
 \text{Massa H}_2\text{O} &= n \times \text{Mr} \\
 &= 50 \text{ mol} \times 18 \text{ g/mol} \\
 &= 900 \text{ gram}
 \end{aligned}$$

d) 2,1 mol Na_2O

$$\begin{aligned}
 \text{Penambahan NaOH} &= 2 \times 2,1 \text{ mol} \\
 &= 4,2 \text{ mol}
 \end{aligned}$$

Gram NaOH yang harus ditambahkan

$$= 4,2 \text{ mol} \times 40 \text{ g/mol} = 168 \text{ gram}$$

Semua massa bahan dibagi dengan 100 dan untuk massa kaolin berdasarkan perhitungan dari mol Al_2O_3 , sehingga massa bahan untuk pembuatan sintesis NaP adalah :

Kaolin = 437,596 gram : 100 = 4,376 gram
 H₂O = 900 gram : 100 = 9 gram
 NaOH = 168 gram : 100 = 1,68 gram +
 Massa total teoritis = 15,056 gram

B4. Persentase Berat Sampel Kering

Persentase berat kering dihitung dengan rumus:

$$\% \text{ berat kering} = \frac{\text{berat padatan}}{\text{berat campuran}} \times 100\%$$

Dimana komposisi awal dari sintesis sebanding dengan persentase berat 100%.

Variasi *leaching* asam sulfat 4 jam

Waktu hidrotermal (jam)	Berat campuran (berat awal)	Berat padatan (berat akhir)	Persentase berat kering (%)
0	88,5840	25,7409	100
3	5,3852	0,9311	60
6	4,1268	0,8500	71
12	5,0616	1,0178	69
24	5,8885	1,2890	75
48	8,1282	1,9716	83
72	21,4851	5,8276	93

Variasi *leaching* asam sulfat 8 jam

Waktu hidrotermal (jam)	Berat campuran (berat awal)	Berat padatan (berat akhir)	Persentase berat kering (%)
0	90,4018	26,1576	100
3	14,5346	1,6185	38
6	14,2856	1,8118	44
12	14,2864	2,0754	50
24	14,2564	2,1046	51
48	14,3774	2,1768	52
72	14,2428	2,2487	55

Variasi *leaching* asam sulfat 12 jam

Waktu hidrotermal (jam)	Berat campuran (berat awal)	Berat padatan (berat akhir)	Persentase berat kering (%)
0	90,3318	26,2496	100
3	14,5360	1,3713	32
6	14,0636	1,5579	38
12	14,5509	1,5671	37
24	14,5707	1,5898	38
48	14,6016	1,7763	42
72	14,4584	2,0182	48

C. Data Karakterisasi

C1. Data XRF

	Komposisi (%)			
	Kaolin Awal	Waktu <i>Leaching</i>		
		4 Jam	8 Jam	12 Jam
Al ₂ O ₃	36	23,3	23	21
SiO ₂	54,9	65,7	73,3	77,4
K ₂ O	2,88	1,57	1	0,717
CaO	0,58	1,1	0,15	0,081
TiO ₂	0,551	1,05	0,14	0,13
V ₂ O ₅	0,03	0,04	0,006	0,007
MnO	0,039	0,082	0,0059	0,002
Fe ₂ O ₃	3,37	0,81	0,401	0,294
CuO	0,096	0,02	0,016	0,013
NiO ₂	0,585	0,24	0,002	-
P ₂ O ₅	0,88	-	-	-
Cr ₂ O ₃	0,042	-	-	-
ZnO	0,02	-	0,002	-
Rb ₂ O	-	0,38	0,018	0,0081
BaO	-	0,005	-	0,005
Eu ₂ O ₃	-	0,01	-	0,01
Y ₂ O ₃	-	0,002	-	0,002
Ga ₂ O ₃	-	-	-	0,002

C2. Data EDX

Microanalysis Report

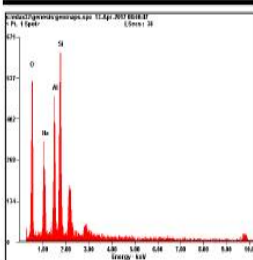
Prepared for: Siti Aminah – ITS

Prepared by: Laboratorium Sentral FMIPA UM

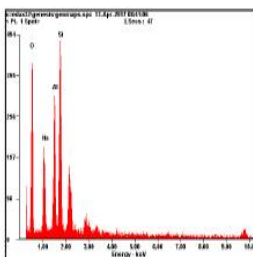
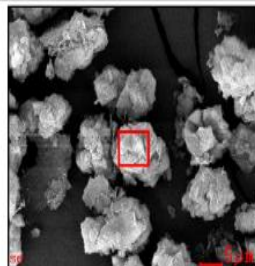


4/13/2017

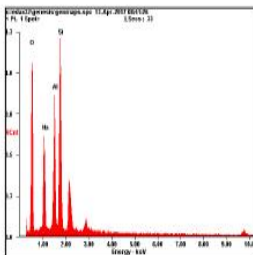
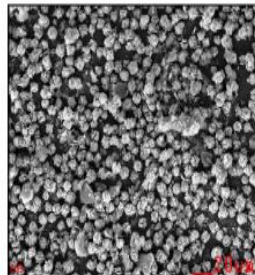
Sampel B25



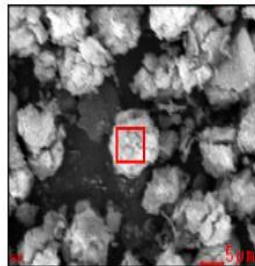
Element	Wt%	At%
OK	41.25	53.60
NaK	14.43	13.05
AlK	17.94	13.82
SiK	26.38	19.53
Matrix	Correction	ZAF



Element	Wt%	At%
OK	42.73	55.17
NaK	13.26	11.91
AlK	18.14	13.89
SiK	25.87	19.03
Matrix	Correction	ZAF



Element	Wt%	At%
OK	42.78	55.11
NaK	14.75	13.22
AlK	17.10	13.06
SiK	25.36	18.60
Matrix	Correction	ZAF



BIODATA PENULIS



Penulis bernama lengkap Siti Aminah dan biasa dipanggil Siti, lahir di Bekasi pada tanggal 18 November 1994, yang merupakan anak pertama dari dua bersaudara. Penulis telah menempuh pendidikan formal di TKIT Al-Ichwan (1999-2001), SDN Mekar Mukti 01 (2001-2007), SMPN 1 Cikarang Utara (2007-2010) dan SMAN 1 Cikarang Utara (2010-2013). Pada tahun 2013 penulis diterima di departemen Kimia FMIPA ITS serta terdaftar dengan NRP. 1413 100 103. Selama masa kuliah penulis aktif dalam organisasi Kementrian Dalam Negeri BEM ITS (Kemendagri) sebagai staff Kemendagri periode 2014/2015 dan Direktorat Jenderal Politik Kampus periode 2015/2016, serta aktif di Lembaga Pers Mahasiswa (LPM) 1.0 sebagai jurnalis dan bendahara umum. Tidak hanya itu, penulis juga aktif menjadi staf Hubungan Luar BEM FMIPA 2014/2015 dan menjadi BPH Syiar JMMI ITS 2015/2016. Penulis juga berkesempatan mendapatkan beasiswa Karya Salemba Empat selama dua periode, menjadi bagian dari Chemistry Week, dan menjadi Best Speaker dalam ITYCEP Indonesia-Thailand. Selain itu, penulis juga pernah melakukan Kerja Praktek di PT. Semen Indonesia, Tbk. di Tuban bagian Quality Assurance selama kurang lebih 1 bulan. Pada akhir masa studi penulis melakukan penelitian tentang sintesis zeolit NaP dari kaolin: pengaruh waktu *leaching* kaolin di bawah bimbingan Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M.Sc. Semoga hasil penelitian ini dapat memberikan manfaat bagi para pembaca dan memberikan inspirasi untuk kemajuan ilmu pengetahuan, khususnya di bidang ilmu kimia.